



# Observation depuis le sol des nuages et des poussières dans l'atmosphère. Applications à la stratosphère polaire et à l'atmosphère de Mars

Alain Sarkissian

## ► To cite this version:

Alain Sarkissian. Observation depuis le sol des nuages et des poussières dans l'atmosphère. Applications à la stratosphère polaire et à l'atmosphère de Mars. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1992. Français. NNT : 1992PA066326 . tel-00747520

**HAL Id: tel-00747520**

**<https://theses.hal.science/tel-00747520>**

Submitted on 31 Oct 2012

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**THESE de DOCTORAT de L'UNIVERSITE PARIS 6**

spécialité:

**PHYSIQUE**

mention:

**ASTRONOMIE ET TECHNIQUES SPATIALES**

Présentée par

**Alain SARKISSIAN**

Pour obtenir le titre de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 6

---

Sujet de la thèse:

**OBSERVATION DEPUIS LE SOL DES NUAGES ET DES  
POUSSIÈRES DANS L'ATMOSPHERE**

**APPLICATIONS A LA STRATOSPHERE POLAIRE ET A  
L'ATMOSPHERE DE MARS**

---

Soutenue le 14 avril 1992 devant le jury composé de:

Mr	J.E. BLAMONT	Président
Mme	J. LENOBLE	
Mr	C. CAMY-PEYRET	Rapporteurs
MM	G. MEGIE	
	J.P. POMMEREAU	Examineurs



## Remerciements

J'adresse tous mes remerciements à Jean-Pierre POMMEREAU, Directeur de Recherche, qui a suivi continuellement mon travail et m'a incité à persévérer dans mes recherches.

Je remercie sincèrement le Professeur Jacques Emile BLAMONT qui m'a encouragé dès le DEA et sans lequel ce travail n'aurait probablement jamais vu le jour.

J'exprime toute ma gratitude au Professeur Jacqueline LENOBLE et à Claude CAMY-PEYRET, Directeur de Recherche, pour les conseils qu'ils m'ont prodigués.

Je remercie le Professeur Gérard MEGIE, membre du Jury, de l'attention qu'il a bien voulu porter à ce travail et Pierre BAUER, directeur du Service d'Aéronomie, pour son accueil au laboratoire.

Mes remerciements vont aussi à tous les membres de l'équipe SAOZ, Florence GOUTAIL, Manuel Nunes PINHARANDA, Jacques PIQUARD, Thierry CARPENTIER, Pierre FRANCOIS, Pierre HULIN, Jean EUGENIE et Michel MAILLET et plus généralement du laboratoire, Hélène LE TEXIER, Anny-Chantal LEVASSEUR-REGOURD, Christian MALIQUE, Yves NIZOU, Eric CHASSEFIERE, Alain HAUCHECORNE, Charles COT, Jean-Claude LEBRUN, Michèle MOREAU, Evelyne MARROUX et Pierrette MONTAGNE pour les conseils et les soutiens dont ils ont bien voulu faire preuve au cours des trois années passées ensemble.

J'exprime également toute ma reconnaissance à Anne-Marie JORUS et à mes amis enseignants de l'Antenne de Versailles de l'Université Pierre et Marie Curie, ainsi qu'à Daniel KUNTH et Ralph KRIKORIAN de l'Institut Astrophysique de Paris.

Je remercie Madame Marie-Thérèse PEYROUX pour son travail lors de la parution de ce mémoire.

## SOMMAIRE

INTRODUCTION .....	1
Les nuages stratosphériques polaires .....	3
Nuages et poussières dans l'atmosphère de Mars .....	4
Présentation de la thèse .....	6
 1ère PARTIE	
LES OUTILS.....	7
I) L'EXPERIENCE SAOZ .....	9
1) PRINCIPE DE LA SPECTROMETRIE UV-VISIBLE DU CIEL AU ZENITH DURANT LE CREPUSCULE.....	10
2) HISTORIQUE DES SPECTROMETRES UV-VISIBLE DESTINES A L'OBSERVATION DE LA STRATOSPHERE .....	12
3) DESCRIPTION DU SAOZ.....	13
4) ANALYSE SPECTROSCOPIQUE.....	19
Principe .....	19
Mesure des constituants.....	24
Colonnes d'absorbant suivant la ligne de visée .....	33
5) CONCLUSION .....	36
II) LE MODELE DE TRANSFERT RADIATIF .....	39
1) PRINCIPE.....	40
2) FORMULATION MATHEMATIQUE.....	41
3) ENTREES DU MODELE.....	43
4) RESULTATS DU MODELE.....	48

5) DISCUSSION DES RESULTATS .....	52
6) APPLICATION DES RESULTATS DU MODELE AUX OBSERVATIONS .....	56
L'ozone .....	56
NO2 .....	60
7) CONCLUSION .....	62
 <b>2ème PARTIE</b>	
<b>LES APPLICATIONS.....</b>	<b>63</b>
<b>III) LA DETECTION DES NUAGES STRATOSPHERIQUES POLAIRES.....</b>	<b>65</b>
1) LES OBSERVATIONS .....	66
2) INTERPRETATION DES OBSERVATIONS .....	70
Propriétés des nuages stratosphériques polaires .....	70
Résultats du modèle .....	72
Conclusion .....	75
3) LES PSC DURANT LA CAMPAGNE CHEOPS III .....	78
4) CONCLUSION .....	81
<b>IV) L'INFLUENCE DES NUAGES ET DES AEROSOLS STRATOSPHERIQUES SUR LA MESURE DE L'OZONE.....</b>	<b>83</b>
1) INFLUENCE DES NUAGES STRATOSPHERIQUES POLAIRES SUR LA MESURE DE L'OZONE.....	84
Introduction .....	84
Eléments d'observations.....	84
Interprétation .....	86
Conclusion .....	87

2) INFLUENCE DES AEROSOLS VOLCANIQUES SUR LA MESURE DE L'OZONE.....	88
<b>V) LA DETECTION DES NUAGES DANS L'ATMOSPHERE DE MARS .....</b>	<b>93</b>
1) L'INSTRUMENT METEGG .....	94
2) LE CAPTEUR OPTIQUE .....	95
3) SIMULATION DE L'ATMOSPHERE DE MARS .....	98
4) RESULTATS DU MODELE .....	100
5) RECOMMANDATIONS.....	104
<b>CONCLUSION.....</b>	<b>105</b>
<b>REFERENCES.....</b>	<b>109</b>
<b>ANNEXE .....</b>	<b>115</b>

## INTRODUCTION

La couleur bleue du ciel provient de la diffusion Rayleigh des photons du soleil avec les molécules de l'atmosphère de dimensions largement inférieures à la longueur d'onde. Le rayonnement est d'autant plus atténué que la longueur d'onde est courte (l'atténuation Rayleigh dépend de la longueur d'onde à la puissance  $-4$ ). Le rayonnement bleu est plus diffusé que le rouge et le ciel est bleu. Lorsqu'un nuage apparaît au-dessus de l'observateur, la diffusion des photons sur les particules du nuage est de type Mie (la dimension des particules et la longueur d'onde du rayonnement sont du même ordre de grandeur). La diffusion Mie dépend peu de la longueur d'onde. Le ciel devient blanc. Le nuage est une source de lumière plus intense que le reste de l'atmosphère au dessus de l'observateur.

Au crépuscule, les rayons lumineux rasants (en dessous de 10 km) sont atténués par les couches denses de l'atmosphère traversées sur des centaines de kilomètres, alors que la stratosphère est encore éclairée par le soleil. En l'absence de nuage ou de poussières dans la stratosphère, le ciel demeure bleu durant tout le crépuscule. En présence de fines couches de nuages stratosphériques polaires (PSC, ou Polar Stratospheric Clouds en anglais), ou de poussières à haute altitude (par exemple projetées par une éruption volcanique, comme le Pinatubo en 1991), le ciel change de couleur. Quelquefois il est bleu très sombre, quelquefois il est blanc et même rouge.

La photographie de la figure 1 a été prise pendant la campagne franco-allemande CHEOPS III (CHemistry of Ozone in the Polar Stratosphere) à Kiruna (Suède, 67°N) en hiver 1990. Des nuages stratosphériques polaires nacrés (Mother of Pearl) sont visibles en blanc, alors que le soleil est à 5° au dessous de l'horizon.

Les nuages troposphériques qui culminent vers 6-7 kilomètres (Cirrus) en région polaire en hiver ne sont plus éclairés par le soleil au crépuscule. Ils sont dans la nuit. La lumière qui les traverse provient des couches plus élevées de l'atmosphère. Les interactions (atténuation et diffusion multiple) que subissent les rayons lumineux en les traversant est identique durant tout le crépuscule. Leur présence ne modifie pas l'évolution de la couleur du ciel.



L'observation visuelle nous indique donc que la couleur du ciel au crépuscule est un indicateur de la présence de nuages ou de poussières dans la stratosphère. C'est sur ce principe que nous nous proposons de développer une méthode de détection des nuages et de mesure de leur altitude à partir du sol, avec deux objectifs en tête: (i) l'étude des nuages stratosphériques polaires dans l'atmosphère de la Terre et (ii) celle des nuages de CO<sub>2</sub> et des tempêtes de poussières dans l'atmosphère de Mars, lors de la mission soviétique MARS 94.



Figure 1: Les nuages nacrés observés le 4 février 1990 à Kiruna. Le soleil est couché, les nuages troposphériques sont dans la nuit et apparaissent en noir sur la photo. Les nuages stratosphériques sont bien visibles en blanc, avec leur forme lenticulaire.

### Les nuages stratosphériques polaires

En 1985, Farman et ses collaborateurs ont découvert une réduction printanière de l'ozone en Antarctique à partir de 1979. Cet événement totalement imprévu, a eu pour conséquence la découverte de mécanismes nouveaux et extrêmement complexes de contrôle de l'équilibre de l'ozone dans la stratosphère, par réactions chimiques hétérogènes de certains constituants de l'air sur les particules des nuages stratosphériques polaires ou d'aérosols volcaniques, entraînant l'activation de radicaux chlorés issus de la photolyse des chlorofluorocarbures ou CFC ou Fréons (Solomon and Garcia, 1986). Toutes les autres hypothèses qui avaient pu être avancées pour interpréter le phénomène, telles que l'activité solaire ont été définitivement rejetées. Cependant, même si on a bien compris que les nuages stratosphériques polaires sont l'un des éléments qui participent au déséquilibre de l'ozone, leur physico-chimie n'est pas encore bien définie.

Comme le ciel est souvent couvert dans les régions polaires en hiver (nuages troposphériques), les observations des nuages stratosphériques depuis le sol sont très difficiles. La plupart des informations les concernant proviennent de quelques vols en ballons (Hofmann et al. 1990, Herman et al. 1991) ou en avions (Poole, 1987) et d'observations par occultation solaire depuis le satellite SAM II (Mc Cormick et al., 1982, Mc Cormick and Trepte, 1987). Les vols en ballons ou en avions nécessitent en général une longue mise en oeuvre. Ils sont coûteux et donc en nombre limité. Les observations par satellite ne peuvent être effectuées qu'au terminateur, donc dans un domaine de latitude restreint. Les observations à l'oeil nu ou par lidar depuis le sol sont limités par les conditions de beau temps dans la troposphère. Une détection systématique depuis le sol par tout temps permettrait une étude continue sur de très longues périodes, donc adaptée aux fréquences d'apparitions des PSC et à l'étude de leur évolution. C'est ce qui a déterminé le choix des données et de l'instrumentation que je vais présenter maintenant.

Les observations dont nous disposons pour l'étude des nuages stratosphériques polaires sont celles obtenues par les spectromètres UV-visibles SAOZ (Système d'Analyse pour l'Observation de la Stratosphère), conçus au Service d'Aéronomie pour effectuer des mesures crépusculaires des constituants stratosphériques depuis le sol par tout temps. Ils permettent d'obtenir des spectres du ciel avec une résolution de 1 nm, entre 290 et 600 nm. Les instruments effectuent des observations toutes les 300 secondes jusqu'à 94-95° de distance zénithale solaire (SZA, ou Solar Zenith Angle en anglais). L'analyse en temps réel permet de calculer par méthode de spectrométrie différentielle les absorptions atmosphériques dues à O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O. En fin d'analyse, le spectre initial est corrigé de ces absorptions. Ses caractéristiques spectrales à large bande ne dépendent

plus que des propriétés diffusantes de l'atmosphère, c'est à dire de la présence des nuages et des aérosols.

Il existe actuellement 13 SAOZ. Certains fonctionnent durant toute l'année dans les régions polaires, comme celui de Dumont d'Urville (67°S, 140°E, Terre Adélie), depuis 1988 et celui de Sodankyla (Finlande, 67°N) installé depuis l'hiver 1990. D'autres sont installés à nos latitudes, comme celui de la Jungfraujoch en Suisse (3600 m d'altitude). Le SAOZ placé depuis 1988 sur le bateau l'Astrolabe effectue deux fois par an le trajet Le Havre-Dumont d'Urville.

Pendant et après la campagne CHEOPS III (hiver 1990) destinée à l'étude de l'ozone polaire, un SAOZ était installé à Kiruna dans le Nord de la Suède. Durant la campagne et à cause du mauvais temps, nous n'avons observé visuellement que quatre fois des nuages stratosphériques depuis le sol. Deux expériences en ballon ont permis d'obtenir une dizaine de profil verticaux des particules. Une observation continue des nuages stratosphériques polaires était donc la bienvenue. C'est à partir des observations pratiquées durant CHEOPS III que nous avons imaginé une méthode de détection des nuages stratosphériques à l'aide des spectromètres SAOZ. La méthode une fois démontrée pour les nuages stratosphériques polaires pourra être généralisée à la détection des aérosols par exemple volcaniques, comme en 1991 à la suite de l'éruption du volcan Philippin Pinatubo.

### Nuages et poussières dans l'atmosphère de Mars

La météorologie de l'atmosphère très ténue de Mars est principalement conditionnée par le rayonnement et trois constituants: le dioxyde de carbone CO<sub>2</sub>, l'eau et les poussières.

Les conditions météorologiques au niveau du sol sont susceptibles de produire dans les régions les plus froides (polaires), des nuages et des brumes formés de particules de glace de CO<sub>2</sub> ou d'eau.

Vers 45 km, des nuages formés probablement de glace d'eau ont été détectés par la sonde Phobos 2 (Blamont et al., 1991; Chassefière et al., 1991). Les origines de la formation des nuages ne sont pas encore bien déterminées.

Les vents parfois très violents sont capables de soulever la poussière du sol jusqu'à une altitude de 50 km. Ces poussières interviennent dans le bilan radiatif de l'atmosphère et vraisemblablement dans son équilibre photochimique par suite de réactions hétérogènes semblables à celles qui existent dans la stratosphère terrestre.

L'étude des nuages et des poussières est l'un des objectifs de l'expérience METEGG (METeorological EGG) qui consiste à envoyer sur la planète Mars en 1994 (mission MARS-94, lanceur russe), des petites stations météorologiques constituées de sondes de température, pression, humidité et d'un capteur optique simple. Ce dernier dont le Service d'Aéronomie est responsable est semblable en conception à celle du spectromètre SAOZ, mais très simplifié à cause de la masse disponible limitée à 80 g et comporte 4 canaux. Trois sont destinés à l'observation de domaines spectraux étroits (40 nm de bande passante). Ils permettront la mesure de l'ozone et l'étude des nuages de CO<sub>2</sub> ou d'eau. Le quatrième observera les variations de flux intégré entre 250 et 600 nm. Il permettra la détection des poussières soulevées par les violentes tempêtes qui règnent en hiver. L'instrument effectuera 48 observations par jour: une mesure toutes les 15 minutes au cours des crépuscules jusqu'à 95° SZA et deux par heure dans la journée.

La méthode de détection des nuages mise au point pour l'étude de la stratosphère terrestre sera appliquée à la définition (longueurs d'onde d'observation, sensibilité, etc...) de l'instrument optique de l'expérience METEGG et plus tard à l'interprétation des observations qui nous parviendront à partir de 1995.

### Présentation de la thèse

L'expérience SAOZ est un tout complexe qui comporte à la fois un instrument, un logiciel d'analyse spectroscopique, un autre de transmission en temps réel des données par satellite et un troisième de restitution des densités de colonne des constituants à partir d'un modèle de transfert radiatif dans l'atmosphère. Sa mise au point et l'amélioration permanente de ses performances est l'œuvre d'une équipe.

Ma contribution a consisté:

- à participer à l'amélioration du logiciel d'analyse spectroscopique;
- à développer un modèle de transfert radiatif destiné à l'interprétation des observations du ciel au zénith et à déduire les densités de colonne verticale des absorbants;
- à interpréter les observations de nuages stratosphériques polaires effectuées par le SAOZ durant la campagne CHEOPS III à laquelle j'ai participé en hiver 1989-90 et enfin
- une fois la méthode validée, à simuler à l'aide du modèle les observations du ciel de Mars depuis le sol, en vue de définir le capteur optique de l'expérience METEGG.

La thèse sera composée de deux parties. Dans la première, je présenterai les outils nécessaires à la méthode de détection des nuages: le spectromètre UV-visible SAOZ et son emploi (chapitre I) et le modèle de transfert de rayonnement que j'ai développé (chapitre II). La deuxième partie portera sur les applications de ces techniques à la détection des nuages terrestres et martiens. Je présenterai tout d'abord la méthode de détection des nuages stratosphériques polaires imaginée durant la campagne CHEOPS III (chapitre III), dont je démontrerai la validité par comparaison avec les observations pratiquées en ballon. Je l'appliquerai par la suite à trois cas particuliers:

- le calcul du biais systématique qu'entraînent les nuages stratosphériques dans la mesure de l'ozone total depuis le sol ou l'orbite;
- la détection et la mesure de l'épaisseur optique des aérosols volcaniques du Pinatubo en 1991 et le calcul du biais systématique qu'ils entraînent dans la mesure de l'ozone total depuis le sol et
- la mesure des nuages et des poussières dans l'atmosphère de Mars à partir des stations au sol de l'expérience METEGG.

## **1ère PARTIE**

### **LES OUTILS**

La spectrométrie UV-visible du ciel au zénith durant le crépuscule permet de mesurer à distance les absorbants stratosphériques dont les signatures spectrales sont amplifiées par la géométrie de l'observation. Un modèle de transfert radiatif permet de simuler cette amplification et donc de déterminer la quantité de constituant, qu'il soit une espèce chimique comme  $O_3$  ou  $NO_2$  ou un nuage diffusant. Nous allons dans cette première partie, présenter les outils qui nous permettront de détecter les nuages: le spectromètre SAOZ et le modèle de transfert radiatif.



## **CHAPITRE I**

### **L'EXPERIENCE SAOZ**



### 1) PRINCIPE DE LA SPECTROMETRIE UV-VISIBLE DU CIEL AU ZÉNITH DURANT LE CRÉPUSCULE

La spectrométrie UV-visible du ciel au zénith durant le crépuscule a pour objectif l'étude de la stratosphère et de ses principaux constituants minoritaires ( $O_3$  et  $NO_2$ ) depuis le sol par tous temps (Pommereau and Goutail, 1988c, ou Solomon et al., 1987). Les rayons solaires éclairent l'atmosphère, dont les molécules diffusent la lumière dans toutes les directions (diffusion Rayleigh). Vu depuis le sol, le maximum d'intensité est situé vers 450 nm, c'est-à-dire dans le bleu. Dans le spectre on observe les raies de Fraunhofer formées dans l'atmosphère solaire, ainsi que les bandes d'absorptions des molécules présentes dans l'atmosphère: l'ozone, le dioxyde d'azote, le dimère de l'oxygène  $O_4$  (ou  $O_2-O_2$ ),  $OCIO$ ,  $BrO$  et la vapeur d'eau.

Observons la figure 2 où l'on a représenté la Terre, quelques couches de l'atmosphère et les rayons solaires.

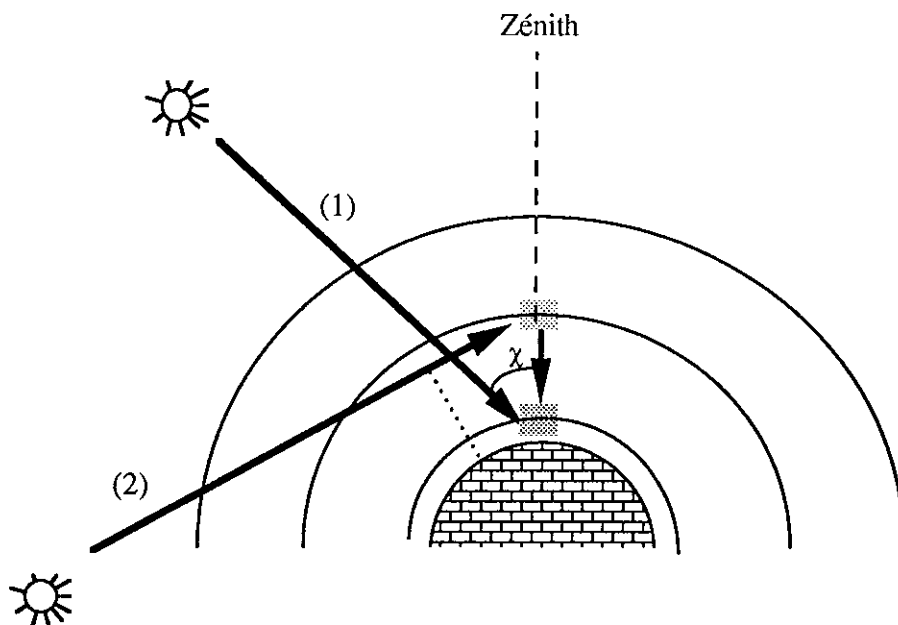


Figure 2: Traversée des rayons solaires dans l'atmosphère de la Terre. Pour une observation du ciel au zénith à : (1)  $\chi < 90^\circ$  SZA et (2)  $\chi > 90^\circ$  SZA. L'altitude de la couche moyenne de diffusion augmente avec  $\chi$  et diminue avec la longueur d'onde d'observation.

Lorsque la distance zénithale du soleil  $\chi$  est faible (1), les rayons qui éclairent l'observateur sont diffusés par l'air près du sol. Les rayons lumineux traversent en oblique l'atmosphère. Le trajet optique est multiplié par un facteur voisin de  $1 / \cos(\chi)$  (approximation d'une atmosphère plane) par rapport au trajet vertical lorsque le soleil est au zénith. La densité de colonne (nombre de molécules par unité de surface) sur la ligne de visée est égale au produit de ce facteur par la densité de colonne verticale.

Au crépuscule, lorsque le soleil est bas sur l'horizon (2), les rayons qui traversent l'atmosphère sont d'autant plus atténués qu'ils sont près du sol et que leur longueur d'onde  $\lambda$  est courte. L'atténuation Rayleigh domine. L'altitude à laquelle les rayons reçus au niveau du sol sont diffusés ou couche moyenne de diffusion, croît avec la distance zénithale du soleil et lorsque la longueur d'onde diminue. Les rayons lumineux sont tangents à l'altitude d'impact (point où le rayon lumineux est le plus près de la Terre). Par la suite, ils traversent la basse atmosphère verticalement. Supposons que le constituant soit situé dans une seule partie de l'atmosphère. Si celle-ci est près du sol (par exemple la vapeur d'eau), sa densité de colonne sur la ligne de visée est proche de la quantité verticale. S'il est situé à l'altitude du point d'impact (par exemple l'ozone), la densité de colonne sur la ligne de visée est maximale.

Nous adopterons les termes de facteur d'amplification ou facteur de masse d'air  $AMF_x(\chi, \lambda)$  (Enhancement Factor ou Air Mass Factor en anglais), pour quantifier le rapport entre les densités de colonne du constituant  $x$  suivant la ligne de visée  $N_x(\chi, \lambda)$  et suivant la verticale du lieu d'observation  $N_{x,v}$ .

$$AMF_x(\chi, \lambda) = \frac{N_x(\chi, \lambda)}{N_{x,v}}$$

La spectrométrie UV-visible permet de mesurer  $N_x(\chi, \lambda)$ . Un modèle de transfert radiatif permet de calculer  $AMF_x(\chi, \lambda)$ , donc d'évaluer  $N_{x,v}$ .

Par exemple, le facteur d'amplification de l'ozone  $AMF_{O_3}(\chi, \lambda)$  à 510 nm et 90° SZA est proche de 17, alors qu'il n'est plus que de 3 à 70°. Ceci explique l'intérêt des mesures crépusculaires.

En plus de l'ozone, la spectrométrie UV-visible permet de mesurer de la même manière  $NO_2$  vers 450 nm,  $OCIO$  et  $BrO$  vers 350 nm, ainsi que les particules stratosphériques. Ce sont des constituants qui interviennent tous dans l'équilibre de l'ozone.

## 2) HISTORIQUE DES SPECTROMETRES UV-VISIBLE DESTINES A L'OBSERVATION DE LA STRATOSPHERE

Les progrès technologiques de ces dernières années ont guidé le développement de la spectrométrie UV-visible, permettant de passer des spectromètres à longueurs d'onde discrètes, employées dès 1926, aux spectromètres à larges bandes spectrales. Les premiers mesurent un constituant par comparaison de son absorption à deux longueurs d'onde. Les seconds mesurent plusieurs constituants simultanément et à un grand nombre de longueurs d'onde diminuant ainsi les incertitudes sur l'identification et la mesure.

Le premier spectromètre utilisé pour la mesure de constituants stratosphériques par absorption de la lumière du soleil fut le spectromètre Dobson inventé en 1926. Ce spectromètre observe à deux longueurs d'ondes proches (310 et 320 nm) mais néanmoins suffisamment distantes pour que la différence d'absorption par l'ozone soit significative. Cette méthode de mesure d'un constituant par comparaison de son absorption à deux longueurs d'onde différentes s'appelle la méthode différentielle. Près d'une centaine de spectromètres Dobson sont actuellement déployés dans le réseau mondial de surveillance de l'ozone. Le spectromètre utilise un prisme comme élément dispersif. Les premières versions employaient des plaques photographiques, plus tard remplacées par des photomultiplicateurs.

L'utilisation de micro-ordinateurs a permis d'automatiser la méthode de mesure sans toutefois modifier le principe de base de la mesure différentielle à deux longueurs d'ondes. Brewer, McElroy et Kerr (1973), ainsi que Blamont, Pommereau et Souchon (1975), ont utilisé les uns un spectromètre, les autres un photomètre pour mesurer la colonne verticale du dioxyde d'azote dans l'atmosphère à deux longueurs d'onde comprises entre 400 et 450 nm, par la même méthode. Vers la même époque, Noxon (1979) mettait au point une observation depuis le sol du dioxyde d'azote de la même manière, mais au voisinage de 450 nm. Vers la fin des années 1980, la méthode à deux longueurs d'onde était appliquée dans l'espace, pour la mesure de l'ozone par observation au nadir (expériences Total Ozone Mapping Spectrometer, TOMS et Backscatter Ultra-Violet, SBUV, à bord du satellite NIMBUS 7), ou pour celles de O<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub> au limbe (Solar Mesospheric Explorer, SME), ou encore pour celles, simultanées, de O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O et des aérosols par occultation solaire directe (Solar Aerosol and Gas Experiment, SAGE 1 et 2). Parfaitement adaptée à l'ozone, la spectrométrie à deux longueurs d'ondes est une méthode à haut risque pour les constituants faiblement absorbants, dont il n'est jamais exclu que les signatures spectrales puissent interférer avec celles d'autres constituants.

Un progrès significatif a été apporté par l'emploi de spectromètres à balayage. Les spectres étaient obtenus sur un large domaine spectral. Ils permettaient à la fois l'identification et la mesure de l'absorbant. Mais les variations de transmission atmosphérique durant l'enregistrement d'un spectre, dues aux brouillards et aux nuages, entraînaient des variations d'intensité largement supérieures aux signatures spectrales. Ils n'étaient donc pas adaptés aux observations de la stratosphère depuis le sol.

L'apparition sur le marché à partir de 1985 des diodes multiples en barrettes, a renouvelé totalement la spectrométrie atmosphérique dans l'ultraviolet et le visible. Pour la première fois, il devenait possible d'observer simultanément un grand nombre de longueurs d'onde dans un large domaine spectral et de s'affranchir totalement des variations temporelles de transmission atmosphérique. Une nouvelle technique dite d'absorption différentielle (Pommereau and Goutail, 1988c, ou Solomon et al. 1987), qui consiste à n'étudier que les signatures spectrales fines des absorbants en s'affranchissant des signatures à larges bandes dans lesquelles interfèrent les phénomènes de diffusion, était proposée. Ainsi, en 1986 et 1987, Mount, Solomon et leurs collaborateurs ont déployé en Antarctique un spectromètre utilisant une barrette Reticon pour la mesure de  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{OCIO}$  et  $\text{BrO}$ . Simultanément, en 1987, J.P. Pommereau et F. Goutail ont élaboré sur ce concept le SAOZ, que nous allons présenter. Depuis, de nombreuses équipes scientifiques ont développé des spectromètres UV-visible pour l'observation de la stratosphère. Actuellement, plus de 20 laboratoires ont ou sont en train de développer des instruments de ce type.

### 3) DESCRIPTION DU SAOZ

Le SAOZ a été conçu à la suite de la découverte du trou d'ozone en Antarctique à partir de 1985. Il était destiné à la mesure de l'ozone stratosphérique à Dumont d'Urville (Antarctique) par observation du spectre du ciel au zénith durant le crépuscule. En effet, dans les régions polaires en hiver, la mesure de l'ozone dans l'UV est impossible car la distance zénithale solaire est supérieure à  $80^\circ$ . Pour la première fois, l'ozone était mesuré dans le visible (bandes de Chapuis, 450-600 nm) où, avantage supplémentaire par rapport aux bandes de Huygins situées dans l'UV entre 210 et 310 nm, la section efficace ne dépend pas de la température (entre 590 et 610 nm, à 230 et 299 K, moins de 1% de variation ce qui est dans la limite des erreurs expérimentales, Amoruso et al., 1990). qui peut varier entre  $-80$  à  $-20^\circ\text{C}$  dans la stratosphère.

En plus de l'ozone, le SAOZ mesure  $\text{NO}_2$ ,  $\text{OClO}$ ,  $\text{BrO}$  et les nuages stratosphériques polaires, des constituants qui interviennent tous dans le processus de formation du trou d'ozone antarctique. Un pointeur permet également l'observation de la Lune (donc des mesures de nuit) et du soleil.

Comme les régions polaires sont parfois difficiles d'accès (la base de Dumont d'Urville n'est accessible que 3 mois par an), le système:

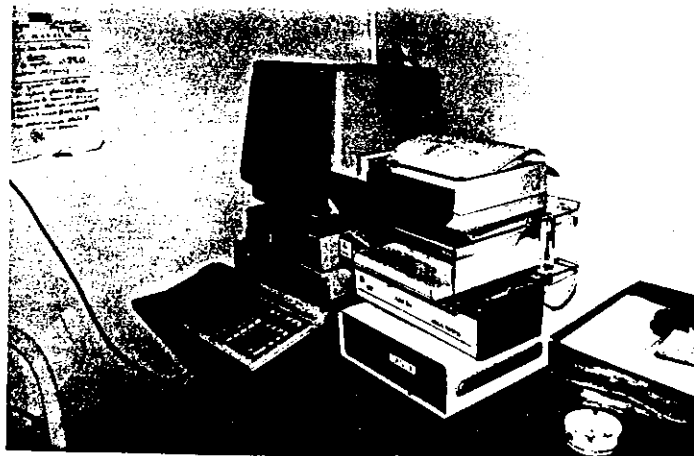
- est automatisé grâce à un ordinateur performant Hewlett Packard 9000;
- est de maintenance simple: un minimum de pièces mécaniques mobiles (uniquement un obturateur) et un caisson hermétique étanche et déshydraté;
- effectue l'acquisition, l'analyse spectroscopique et restitue les résultats en temps réel;
- transmet automatiquement les résultats au laboratoire par l'intermédiaire d'une balise ARGOS (système de localisation et de collecte de données par satellite).

La figure 3 montre le SAOZ. Le caisson étanche (a) contenant le spectromètre et son électronique est placé sur un toit ou une terrasse et le ordinateur (b), dans un local abrité. Au-dessus du caisson, une fenêtre permet l'observation au zénith. Le pointeur sous la coupole transparente permet l'observation du soleil, de la Lune ou de toute autre direction. Par un jeu de miroirs plans à l'intérieur de la caisse, les observations au zénith et pointées sont alternativement dirigées vers le spectromètre. Le signal reçu par le détecteur situé dans le plan focal du spectromètre est digitalisé et transmis au ordinateur. Après réduction, les résultats sont imprimés et enregistrés. Une sélection des résultats (mesures crépusculaires) est transmise par la balise ARGOS. Les données brutes sont envoyées ultérieurement en laboratoire sous forme de disquettes pour ré-analyse.

Le spectromètre lui-même est un instrument commercial Jobin-Yvon CP200 (ou UFS200 pour la version ancienne des SAOZ 01 à 04) ouvert à  $f / 2.9$ . Son champ d'observation est de  $30^\circ$ . La lumière tombe sur une fente d'entrée de  $25 \mu\text{m} \times 2.5 \text{ mm}$ . Elle est renvoyée par un miroir plan, vers un réseau holographique concave à champ plan, qui permet d'éviter les montages classiques: collimateur-disperseur-focaliseur très sensibles aux variations de température, tout en conservant une focale plane. Le réseau a une distance focale de 190 mm, une densité de 200 traits par millimètre et une dispersion d'environ 240 nm par centimètre.



a) Le spectromètre et l'électronique sont dans le caisson. Les observations sont effectuées par la fenêtre de visée zénithale au centre. A droite, sous la coupole, le pointeur.



b) Le calculateur Hewlett-Packard 9000.

Figure 3: L'instrument SAOZ.

Le détecteur en barrette linéaire Hamamatsu est formé de diodes de dimensions identiques à la fente d'entrée (25  $\mu\text{m}$ ) et qui jouent donc le rôle de fente de sortie. La barrette de diodes est composée de 512 éléments. Elle est positionnée dans le plan focal du réseau pour détecter le spectre au premier ordre, entre 290 et 600 nm environ.

Le calculateur est un Hewlett-Packard 9000 Série 300 332. Le signal en provenance de la barrette de photodiodes est digitalisé sur 12 bits, puis transmis au calculateur par l'intermédiaire d'un câble dont la longueur peut atteindre 15 mètres. Cela permet de placer le calculateur dans un local où la température est suffisamment stable et adaptée au bon fonctionnement de celui-ci, alors que le spectromètre est placé sur un toit ou une terrasse. Il fonctionne avec le SYSTEM 5.13 et la programmation se fait dans le langage BASIC 5.1.

Le programme principal du SAOZ, "Temps Réel", gère (acquisition et réduction des données) le système en temps réel. Le programme "Relecture" permet une ré-analyse ultérieure plus fine des spectres, afin de vérifier le traitement et de le modifier le cas échéant.

Un cycle complet de mesure dure 300 secondes, dont 120 sont réservées à l'acquisition. Le temps d'exposition  $t$  (compris entre 0.1 et 120 secondes) d'un spectre est optimisé pour que le rapport signal sur bruit soit maximum, sans toutefois approcher des limites de saturation. Le calculateur commande alors  $n$  observations ( $t \times n = 120$  s) qu'il additionne pour réduire le bruit d'un facteur  $1/\sqrt{n}$ . Le courant d'obscurité du détecteur est mesuré sur une période identique à celle de l'acquisition du spectre chaque fois qu'il est nécessaire (variation du temps d'exposition ou délai supérieur à 1 h) et soustrait du signal.

Dans sa configuration actuelle, le SAOZ est autonome durant trois semaines, limité par la capacité d'enregistrement des spectres sur une disquette. A raison de 15 à 25 spectres par jour en hiver dans les régions polaires (deux à trois fois plus en été ou aux latitudes moyennes), une disquette haute densité permet 900 enregistrements (450 pour les disquettes simples). Dans un futur proche, un disque optique permettra d'obtenir une autonomie de près d'une année. Cette autonomie n'est perturbée qu'en cas de chute de neige, où il faut alors nettoyer le hublot et la coupole, par lesquels pénètre la lumière.

L'adaptation d'une balise ARGOS permet de recevoir les résultats du SAOZ en temps quasi-réel quelque soit sa localisation dans le monde (une émission par la balise toute les 2 minutes, une réception par le satellite toutes les deux heures en moyenne, 20

résultats par transmission), par simple liaison téléphonique au centre de gestion des balises ARGOS à Toulouse.

La simplicité de fonctionnement et de gestion permet au SAOZ d'être opérationnel sur un grand nombre de sites, notamment sur les moins accessibles. Son installation est limitée uniquement par l'existence d'une alimentation (faible consommation) et d'un local pour le calculateur. Ainsi, un SAOZ est installé depuis plus de trois ans sur le pont du bateau l'Astrolabe appartenant aux Expéditions Polaires Françaises. La maintenance, très limitée, est assurée par le commandant du navire. Un autre SAOZ est installé depuis deux mois en Sibérie orientale alors que les moyens de transmission classiques sont inexistants. Enfin, le SAOZ qui pèse 35 kg s'installe en une demi-heure et redémarre automatiquement après une coupure de courant.

La table 1 présente la distribution géographique des différents SAOZ (première colonne), les sites d'observation (deuxième colonne), leurs coordonnées (troisième colonne) et les périodes de fonctionnement (quatrième colonne) effectives ou en prévision. Les configurations P et Argos indiquent respectivement la présence d'un pointeur, en plus des observations au zénith et l'utilisation d'une balise ARGOS pour la transmission des données. L'avant-dernière colonne indique le nom de l'organisme à qui appartient l'instrument, SA pour le Service d'Aéronomie. La dernière colonne indique la campagne à laquelle a participé l'instrument. Ajoutons que depuis 1989, plus de 15 articles portant sur les observations du SAOZ ont été publiés. L'instrument est maintenant commercialisé en France sous licence CNRS par la société Atmos Equipement.



SAOZ	Site	Long., lat.	Période	Conf.	Lab.	Campagne
01	Bateau "Astrolabe" Liaison Le Havre- Dumont d'Urville	Variable	Depuis oct 1988	Argos	TAAF	
02	Søndre Strømfjord (Groenland) Bateau "Polarfront" (Norvège)	67°N, 51°W Variable et 66°N, 2°W	1988-1991 Oct 1991	Argos	SA	CHEOPS EASOE
3P	Dumont d'Urville (Antarctique)	66°S, 140°E	Depuis janv 1988	P Argos	TAAF	
4P	Kiruna (Suède)  Sodankyla (Finlande)	68°N, 22°E  67°N, 27°E	Janv-mars 1988 Jan-fév 1990 Depuis mars 1990	P  Argos	SA	CHEOPS CHEOPS EASOE
5P	Jungfrauoch (Suisse) Scoresbysund (Groenland)	47°N, 8°E 71°N, 22°W	Mars 1989 -juil 1991 Oct 1991	P Argos	SA	EASOE
06	Faraday (Antarctique)	65°S, 64°W	depuis Mars 1990		BAS	
7P	Thulé (Groenland)	77°N, 69°W	depuis Août 1990	P	DMI	EASOE
8P	Ny Alesund (Spitzbergen)	79°N, 11°E	Depuis Juil 1990	P	NILU	EASOE
9P	Aberyswith (U.K.) Lerwick (U.K.)	52°N, 4°E 60°N, 1°W	Déc 1990 à sep 1991 Nov 1991	P	Univ. of Wales	EASOE
10	Durban (Afrique du Sud)	30°S, 31°E	Oct 1991		Univ. of Duban	
11	Jungfrauoch (Suisse)	47°N, 8°E	Oct 1991		IASB	NDSC EASOE
12	Zhigansk (URSS)	67°N, 123°E	Déc 1991	Argos	SA	EASOE
13P	OHP (France)	44°N, 6°E	Déc 1991	P	SA	NDSC

Table 1: Distribution géographique et caractéristiques des SAOZ.

Abréviations:

Configuration pointée (P).

Laboratoires: Service d'Aéronomie (SA), British Antarctic Survey (BAS), Danish Meteorological Institut (DMI), Norsk Institutt for Luftforskning (NILU), Terres Australes et Antarctiques Françaises (TAAF), Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique (IASB).

Campagnes et réseaux: European Arctic Stratospheric Ozone Experiment (EASOE), 1991-92, Network for Detection of Stratospheric Changes (NDSC), début le 1<sup>er</sup> janvier 1991, CHemistry of Ozone in the Polar Stratosphere (CHEOPS), hivers 1987-88 et 89-90.

#### 4) ANALYSE SPECTROSCOPIQUE

##### Principe

L'analyse spectroscopique a pour objectif d'identifier et de mesurer l'atténuation correspondant à chaque absorbant ( $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $O_4$ ,  $H_2O$ ) et à la diffusion Raman ou effet Ring qui entraîne un remplissage relatif des raies fines de Fraunhofer solaires. Les diffusions Rayleigh par les molécules et Mie par les particules, qui sont monotones en longueur d'onde, sont mesurées à 350, 450 et 550 nm. L'analyse consiste à comparer un spectre donné à un spectre de référence supposé peu atténué, en effectuant le rapport entre eux après les avoir soigneusement recalé en longueur d'onde. Le logarithme de ce rapport, proportionnel à une épaisseur optique, est ensuite analysé par une méthode de corrélation des moindres carrés avec les sections efficaces d'absorption ou de diffusion de chaque constituant, déterminées en laboratoire ou publiées dans la littérature.

La méthode appliquée est dite différentielle. Elle consiste à filtrer deux fois le signal en amont du calcul de corrélation: à l'aide d'un filtre passe haut pour supprimer toutes les atténuations à bande plus large que les signatures de l'absorbant recherché et à l'aide d'un filtre passe bas pour éliminer les signatures à plus haute fréquence. La largeur des deux filtres et le domaine spectral d'analyse est adapté en fonction des caractéristiques de chaque absorbant pour minimiser les interférences. L'ozone présente par exemple des structures de 10 nm de large dans le visible entre 450 et 540 nm, alors que celles de  $NO_2$  de 1 nm de large sont maximales entre 410 et 450 nm et que celles de la diffusion Raman sont à encore plus haute fréquence.

A chaque étape du calcul, un spectre synthétique est calculé qui est soustrait du signal initial. De plus, à cause des interférences entre absorbants, le calcul est mené de façon itérative.

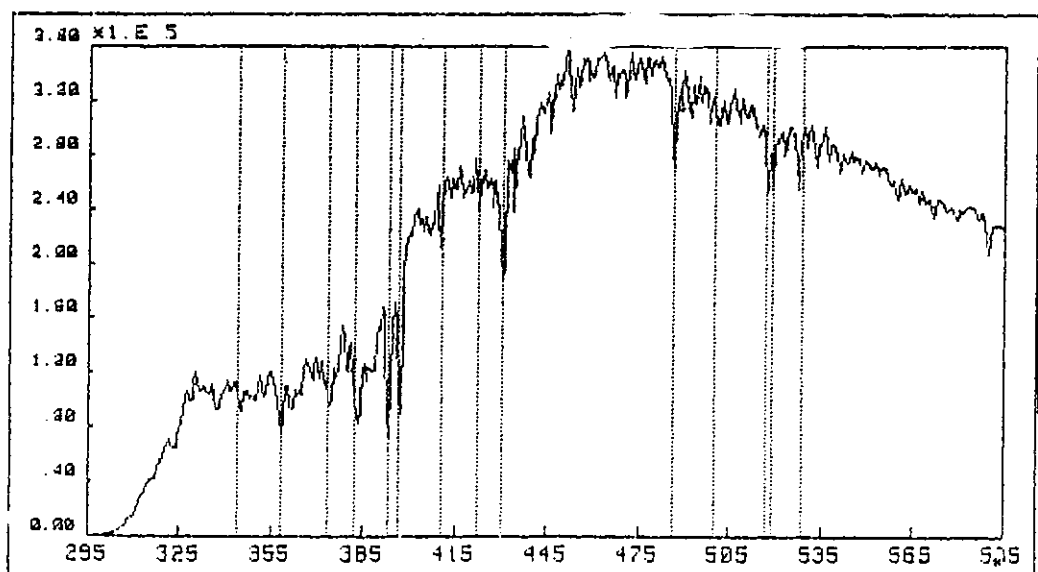
A l'issue de l'analyse spectroscopique, le spectre d'atténuation résiduel laisse apparaître les signatures à large bande des diffusions Rayleigh et Mie et celles à bande plus étroite du bruit du signal, des résidus liés aux imperfections d'adaptation des sections efficaces des absorbants et des signatures inconnues qui sont identifiées peu à peu. C'est ainsi que l'on a progressivement identifié et mesuré  $O_4$  ou encore la vapeur d'eau, dont les sections efficaces sont inconnues. Nous passerons en revue chaque étape de l'analyse spectroscopique.

Nous ne possédons pas de spectre du soleil pris hors atmosphère. Nous avons donc choisi un spectre de référence qui contienne un minimum d'absorption. Le spectre de référence a été enregistré à soleil élevé et à haute altitude (Jungfraujoch, 3600 m) par

temps clair, pour minimiser l'effet de la diffusion multiple dans les nuages et les brumes, qui augmente les densités de colonne. Dans le futur, nous envisageons de le remplacer par un spectre qui sera obtenu à très haute altitude (30 km), en ballon.

La loi en longueur d'onde du spectre de référence échantillonné sur 512 éléments spectraux (pixels) est en première approximation, une loi linéaire. Nous avons déterminé cette loi par corrélation des moindres carrés sur la position de 20 raies de Fraunhofer. L'écart type des valeurs mesurées par rapport à une loi linéaire est de 0.1 nm.

La figure 4 montre le spectre de référence du ciel au zénith enregistré à l'aide d'un SAOZ muni d'un spectromètre UFS200 à la Jungfraujoch, le 7 mars 1990 à 11h 21 TU. La distance zénithale du soleil est 40° SZA. Ce spectre a la forme de la plupart des spectres enregistrés par le SAOZ, avec un maximum vers 450 nm, c'est-à-dire dans le bleu. Les principales raies de Fraunhofer sont soulignées par les repères verticaux en pointillés. Aux longueurs d'onde inférieures à 320 nm, la coupure du spectre est due à l'ozone. Enfin, nous n'avons pas corrigé ce spectre de la sensibilité spectrale du système (détecteur + optique) car ce signal est commun à tous les spectres. Il sera éliminé dans le rapport avec le spectre observé.



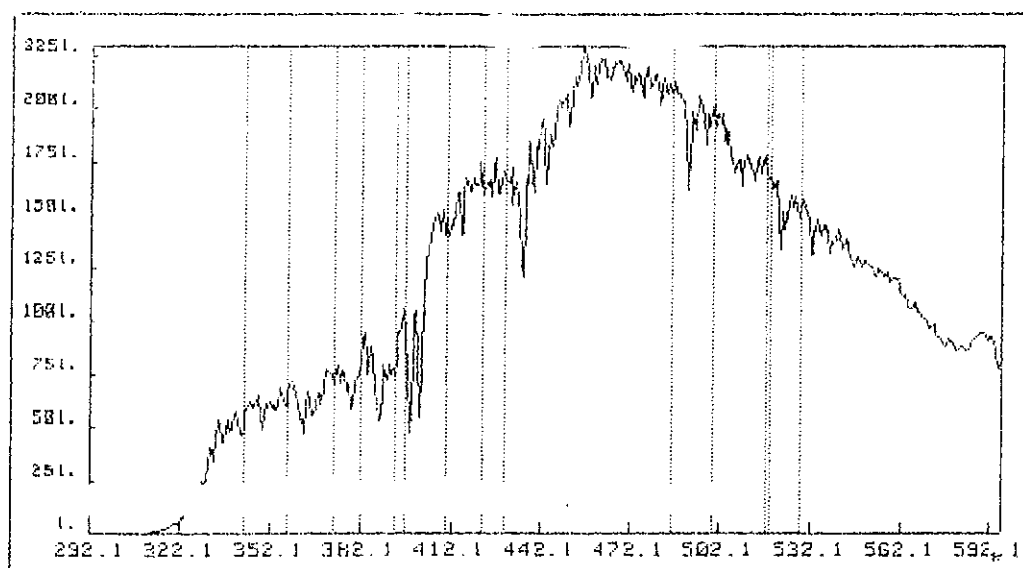
**Figure 4:** Spectre de référence de type zénith obtenu à la Jungfraujoch le 7 mars 1990 à 11h 21 TU (distance zénithale du soleil: 40°). Les positions des raies de Fraunhofer sont indiquées par des traits verticaux en pointillés. En abscisse: longueur d'onde exprimée en nm. En ordonnée: flux exprimé en nombre de coups. Le spectre a été obtenu par sommation de 135 spectres de 0.5 seconde de temps d'exposition.

A chaque type de mesure (zénith, pointé) et à chaque type d'instrument correspond un spectre de référence.

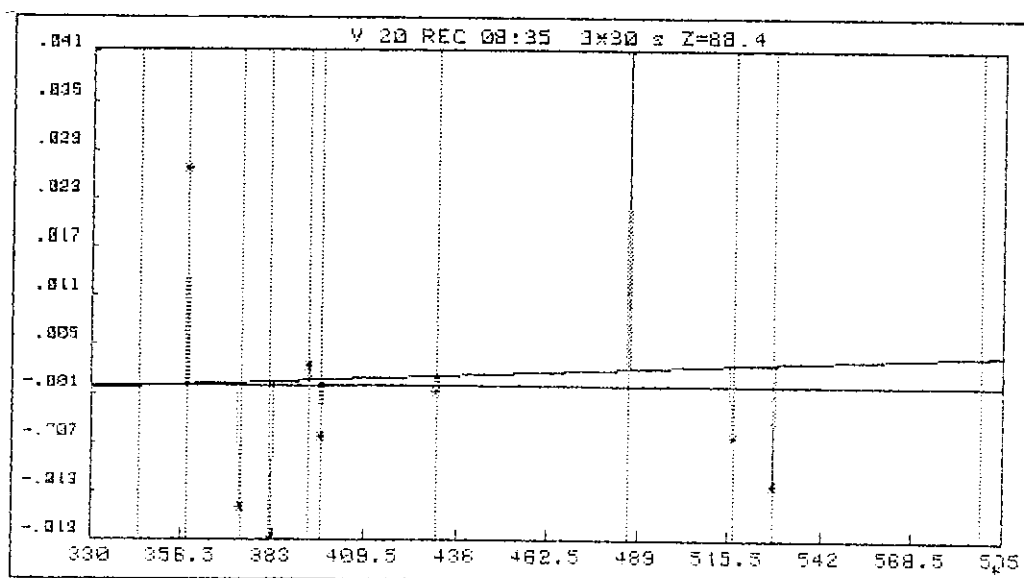
A cause des variations thermiques entraînant des déformations mécaniques et des différences de montages entre les différents SAOZ, les spectres sont décalés en longueur d'onde les uns par rapport aux autres. Il faut donc les recaler avant toute analyse. L'opération est conduite en deux étapes: a) détermination de la loi de décalage en fonction des pixels, supposée linéaire ( $\text{décalage} = A \cdot \text{pixel} + B$ ) et b) application de cette loi au spectre actuel par une méthode d'interpolation pour le recaler sur le spectre de référence.

Les figures 5 à 7 montrent la progression du recalage en longueur d'onde à travers les différentes opérations effectuées. Le spectre de la figure 5 est le spectre décalé par rapport au spectre de référence (figure 4). Il a été obtenu à Kiruna le 1<sup>er</sup> février 1990 à 8h 35 TU lorsque le soleil se trouvait à 88.4° SZA. Les raies de Fraunhofer sont décalées. Le recalage s'effectue par rapport à celles-ci. Chaque structure est décalée de valeurs entières de pixel, de -15 à +15. Une corrélation par les moindres carrés est calculée pour chaque décalage. Les trois plus grandes valeurs de corrélation permettent de déterminer un polynôme du second degré de la valeur de la corrélation en fonction du décalage de la structure. La valeur du décalage de la structure correspond à la position du maximum sur le polynôme. Cette opération, effectuée sur quatorze raies entre 300 et 600 nm, permet d'obtenir la loi linéaire moyenne du décalage. L'écart type des décalages ne dépasse pas 2/10<sup>ème</sup> d'élément par rapport à la droite. La figure 6 présente les différences entre les valeurs de décalages mesurées et la loi linéaire de recalage. L'unité en ordonnée est le pixel. Nous pouvons remarquer que dans ce cas précis, les valeurs ne dépassent pas 1/10<sup>ème</sup> de pixel.

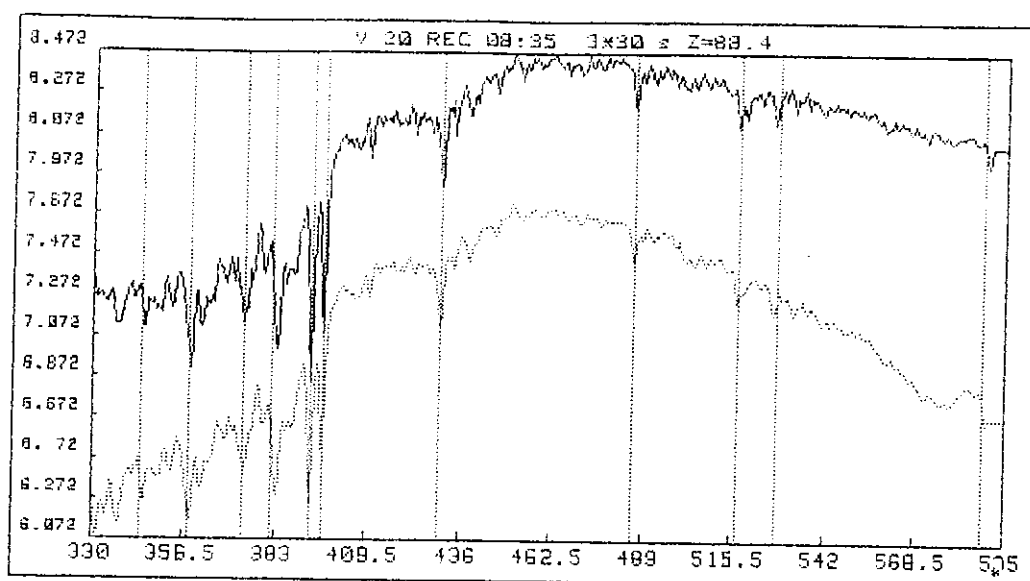
Le recalage du spectre observé par rapport à celui de référence est obtenu par interpolation linéaire. Ils sont comparés sur la figure 7. Le décalage a disparu et les structures sont maintenant superposées. Une autre méthode de recalage par interpolation à l'aide d'un polynôme du second degré défini par trois points a été testée auparavant. Le résultat est que les raies de Fraunhofer du spectre se déforment. Pour l'instant nous gardons donc la méthode d'interpolation linéaire qui est encore la plus satisfaisante.



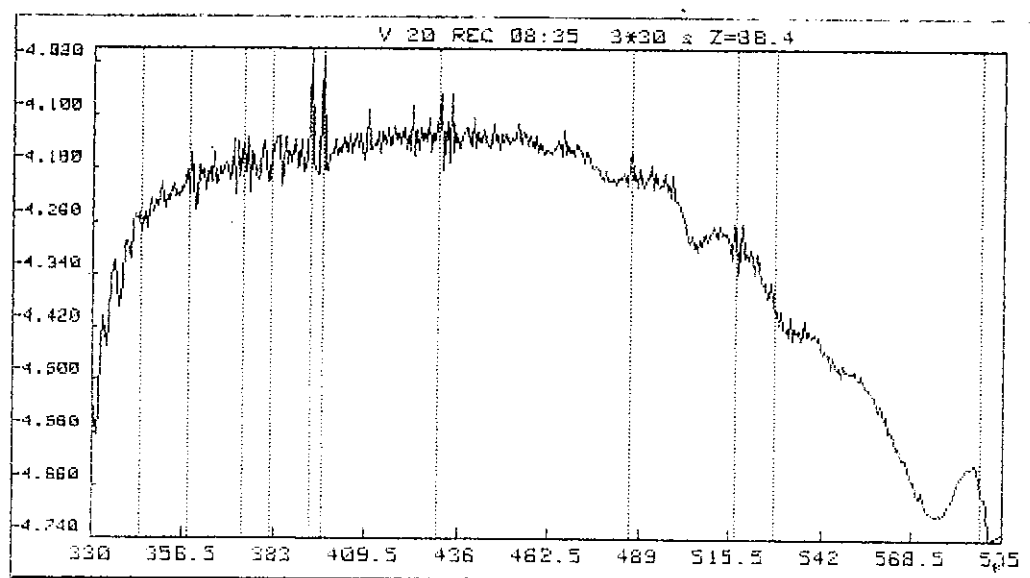
**Figure 5:** Le spectre à recaler par rapport au spectre de référence (figure 4). Les traits verticaux indiquent la position approximative des raies de Fraunhofer sur le spectre de référence. On observe un décalage de 6 nm en moyenne.



**Figure 6:** Les écart des mesures de décalage par rapport à la loi linéaire calculée par la méthode des moindres carrés. L'unité en ordonnée est le pixel. Les valeurs n'excèdent pas 0.1 pixel, ce qui représente moins de 0.1 nm d'incertitude relative. Cet écart sera négligé.



**Figure 7:** Après recalage, le spectre observé est comparé avec le spectre de référence. Toutes les structures se superposent.



**Figure 8:** Le logarithme du rapport entre le spectre observé recalé en longueur d'onde et celui de référence.

### Mesure des constituants

Sur la figure 8, nous avons représenté le logarithme du rapport entre le spectre observé recalé et le spectre de référence. L'unité en ordonnée est donc une épaisseur optique. Dans ce signal apparaissent clairement des structures à large bande, facilement identifiables comme étant celles de l'ozone et de  $O_4$ , puis les structures à bandes étroites du Ring. Les bandes de  $H_2O$  et de  $NO_2$  sont "noyées" dans les structures du Ring. Dans certains cas de forte diffusion multiple dans la troposphère (neige, brouillard), on peut observer  $H_2O$  et  $O_4$  directement dans le spectre tant ils sont amplifiés.

Les constituants sont mesurés un par un, d'après un cycle qui consiste à:

- minimiser la signature des constituants autres que celui à mesurer en filtrant le signal;
- minimiser les risques de mauvaise identification en choisissant un domaine spectral comportant le plus grand nombre de structures spécifiques au constituant;
- minimiser les risques d'interférence avec un autre absorbant;
- mesurer ce constituant par corrélation des moindres carrés avec les sections efficaces;
- soustraire sa contribution sur le signal;
- effectuer l'opération pour les autres constituants;
- réitérer les mesures en réinjectant individuellement les constituants pour réduire les interférences et les incertitudes.

L'épaisseur optique (figure 8) est filtrée deux fois en amont de la mesure d'un constituant: une première, par un filtre passe haut et une seconde par un filtre passe bas.

Le filtre passe haut permet d'éliminer les fréquences spectrales inférieures à celles des structures des sections efficaces du constituant que l'on cherche à mesurer. Le filtre utilisé est en fait un filtre passe bas différentiel. Le filtre passe bas effectue la somme algébrique pondérée par une fonction cosinus appliquée sur  $n$  éléments pris de part et d'autre du pixel central ( $n$  = dimension de la fenêtre de filtrage, la somme des poids appliqués aux  $n$  éléments est égale à 1). Le filtrage passe haut est obtenu en effectuant la différence entre signaux filtré et non filtré. Une fenêtre est d'autant plus grande que les structures à éliminer sont à large bande. Le filtre passe haut permet notamment de se

libérer des structures à très basses fréquences des diffusions Rayleigh et Mie c'est-à-dire de la pente du signal. La figure 9 représente (courbe en pointillés) l'épaisseur optique de la figure 8 lissée ( $n=40$ ) entre 450 et 550 nm. Les très basses fréquences des diffusions Rayleigh et Mie ont disparues, tandis que celles de l'ozone,  $\text{NO}_2$  et du Ring sont bien visibles.

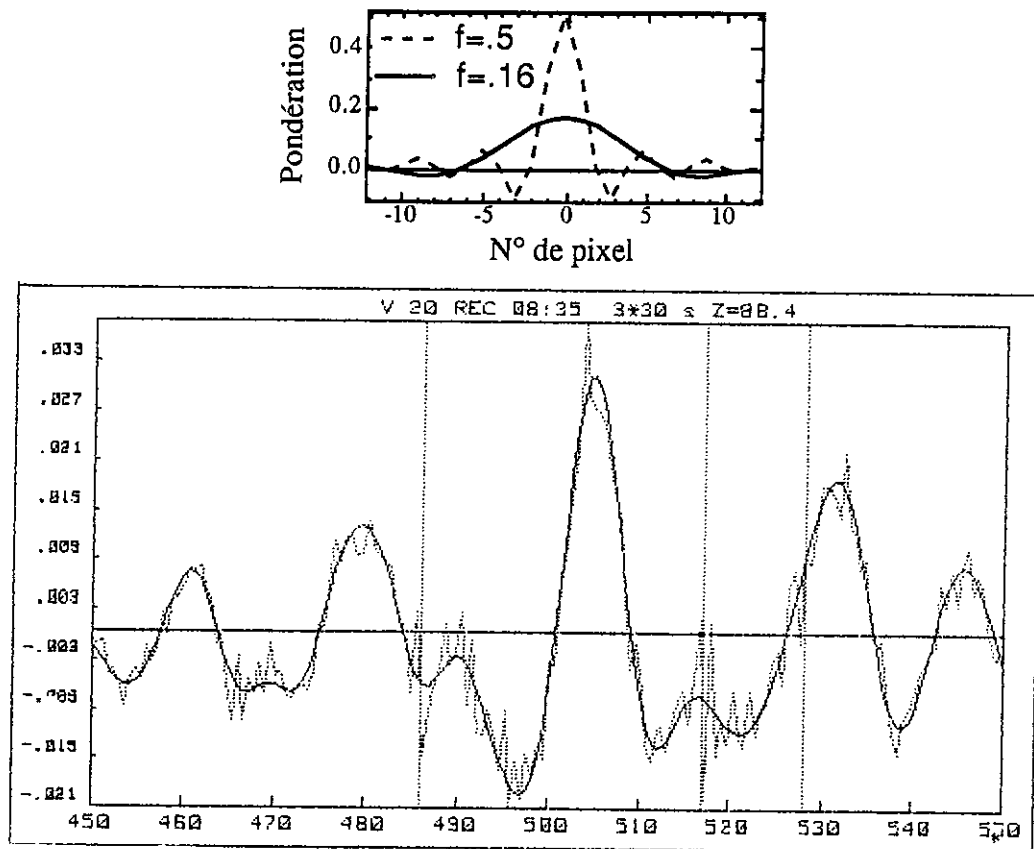


Figure 9: L'épaisseur optique filtrée une fois par un filtre passe haut (en pointillés) et une seconde fois par un filtre passe bas (en trait plein) dont la forme est représentée dans la fenêtre au dessus de la figure ( $f=.16$ ). Les structures de l'ozone sont bien visibles et ne sont pas perturbées par celles de l'effet Ring ou de  $\text{NO}_2$ .

Le rôle du filtrage passe bas est d'éliminer les fréquences spectrales supérieures à celles des structures des sections efficaces du constituant que l'on cherche à mesurer. Le signal est principalement absorbé vers 510 nm par l'ozone. Cependant, l'effet Ring et  $\text{NO}_2$  laissent apparaître des structures à hautes fréquences, susceptibles de perturber la mesure. Un filtre passe bas réduit ces perturbations. Les filtres utilisés sont des filtres de Kaiser (Hamming, 1977) définis sur 25 éléments (fenêtre du filtre, 12 éléments de part et d'autre du pixel considéré) par la fréquence de Nyquist  $f$  ( $0 < f \leq 1$ ) qui est le poids attribué à l'élément central du filtre. La somme des poids appliqués aux 25 éléments est normalisée à 1. La valeur  $f=1$  n'affecte pas le signal. Plus  $f$  est petit, plus les structures à hautes fréquences du signal sont supprimées. La courbe en trait plein de la figure 9



représente le signal filtré par un filtre passe haut ( $n=40$ , la courbe en pointillés) puis par un filtre passe bas ( $f=.16$ ) dont la forme est représentée dans la fenêtre au dessus. Les structures de l'effet Ring et de  $\text{NO}_2$  ont disparues. Celles de l'ozone sont bien visibles.

La fréquence des structures d'une section efficace détermine les filtrages qui seront utilisés pour la mesure d'un constituant. Les filtres passe haut et passe bas sont appliqués de manière similaire sur l'épaisseur optique et les sections efficaces dont les caractéristiques seront présentées maintenant. La table 2 indique les origines, par domaine spectral, des sections efficaces des absorbants utilisés par le SAOZ qui sont représentés sur la figure 9. Pour  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$  et  $\text{O}_4$ , dont les sections efficaces ont été mesurées en laboratoire avec un autre instrument à résolution différente, il a été nécessaire d'effectuer un ré-échantillonnage en longueur d'onde. Cette opération a été effectuée par interpolation linéaire. De plus, dans certains cas, les valeurs ne se recouvrent pas (comme pour l'ozone entre 387 et 408 nm). Nous avons alors effectué une interpolation linéaire. Dans d'autres cas où les origines des sections efficaces sont différentes, les valeurs à longueur d'onde identique sont différentes (comme l'ozone entre 590 et 600 nm). Nous avons alors normalisé les valeurs des unes par rapport aux autres, avec comme critère de choix, les conditions (incertitudes de mesure, mais aussi température et pression les plus proches des conditions atmosphériques) dans lesquelles ces sections ont été obtenues.

$\text{O}_3$	300<->345 0.05 non com. (Bass, com.privée)	345<->348 0.1 4% (Cacciani et al., 1989)	348<->387 0.4 non com. (Wahner, com.privée)	387<->408 0.6 interp. liné.	408<->600 0.4 3% (Johnston, com.privée)	590<->610 0.1 5% (Amoruso et. al,1990)
$\text{NO}_2$	300<-->610 8% 0.04 5% 3% (Schneider et al 1987)					
$\text{O}_4$	330<-->600 0.6 10% (Greenblatt et al 1990)					
$\text{H}_2\text{O}$	400<->600 0.6 50% (SAOZ)					

Table 2: L'origine des sections efficaces. La première ligne de chaque cellule du tableau indique les longueurs d'onde (en nm). La seconde ligne indique l'échantillonnage (en nm) et la troisième, l'incertitude relative. Les références bibliographiques sont indiquées entre parenthèses. Remarquons la diversité des origines des sections efficaces de l'ozone, dont les valeurs ne se recoupent pas toujours.

Pour la vapeur d'eau, nous avons mesuré une section efficace relative avec le SAOZ en choisissant un spectre très absorbé (brouillard intense). Nous avons analysé et corrigé ce spectre de toutes les autres absorptions ( $O_4$ ,  $O_3$  et  $NO_2$  dont les signatures spectrales interfèrent avec celle de  $H_2O$ ), puis nous avons déterminé la section efficace relative de la vapeur d'eau sur l'épaisseur optique résiduelle absolue. Ces sections obtenues avec un incertitude relative de 10% ont été ensuite normalisées sur la bande à 505 nm d'après des mesures obtenues à l'aide d'un instrument muni d'un projecteur et suivant un long parcours optique (3 km) au niveau du sol (40% d'incertitude relative).

L'un des problèmes majeurs que nous avons rencontré est la qualité des sections efficaces dont l'incertitude relative est de l'ordre de 3% pour l'ozone, 5% pour le dioxyde d'azote, 10% pour  $O_4$  et 50% pour  $H_2O$ . Un nouveau "jeu" de sections efficaces obtenu en laboratoire et de meilleure qualité serait nécessaire.

Enfin, remarquons (figure 10) les structures à bande étroite (2 à 5 nm de large) de  $NO_2$  et  $H_2O$  entre 400 et 600 nm, alors que  $O_3$  et  $O_4$  ont des bandes de 10 à 20 nm de large. Entre 560 et 600 nm, les bandes intenses d'absorption de  $H_2O$ ,  $O_4$  et  $O_3$  se recouvrent.

L'effet Ring (Solomon et al., 1987) consiste en une redistribution en longueur d'onde des photons lors de leur diffusion par les molécules de l'atmosphère ou diffusion Raman. Autour d'une raie de Fraunhofer intense, cet effet est bien visible: la raie est moins intense et plus large après diffusion (remplissage de la raie). La forme de la nouvelle répartition des photons est reconstituée de façon empirique, en appliquant un filtre passe haut (ou passe bas différentiel, fenêtre de 4 pixels) sur le spectre de référence. Par exemple, deux raies de Fraunhofer intenses sont représentées sur la figure 11 (traits pleins). Après l'application d'un filtre passe bas elles sont plus larges et moins intenses (pointillés). L'effet est semblable à la diffusion Raman. La "section efficace" (ce n'est qu'une analogie) différentielle de l'effet Ring fait apparaître les pics d'absorption à l'emplacement des raies (figure 12).

La mesure d'un constituant consiste à calculer les coefficients des droites de corrélation entre la section efficace et l'épaisseur optique, toutes deux filtrées (donc différentielles). La pente de cette droite représente la quantité  $Q$  du constituant. L'écart quadratique moyen ( $1\sigma$ ) représente l'incertitude de mesure  $R$ .

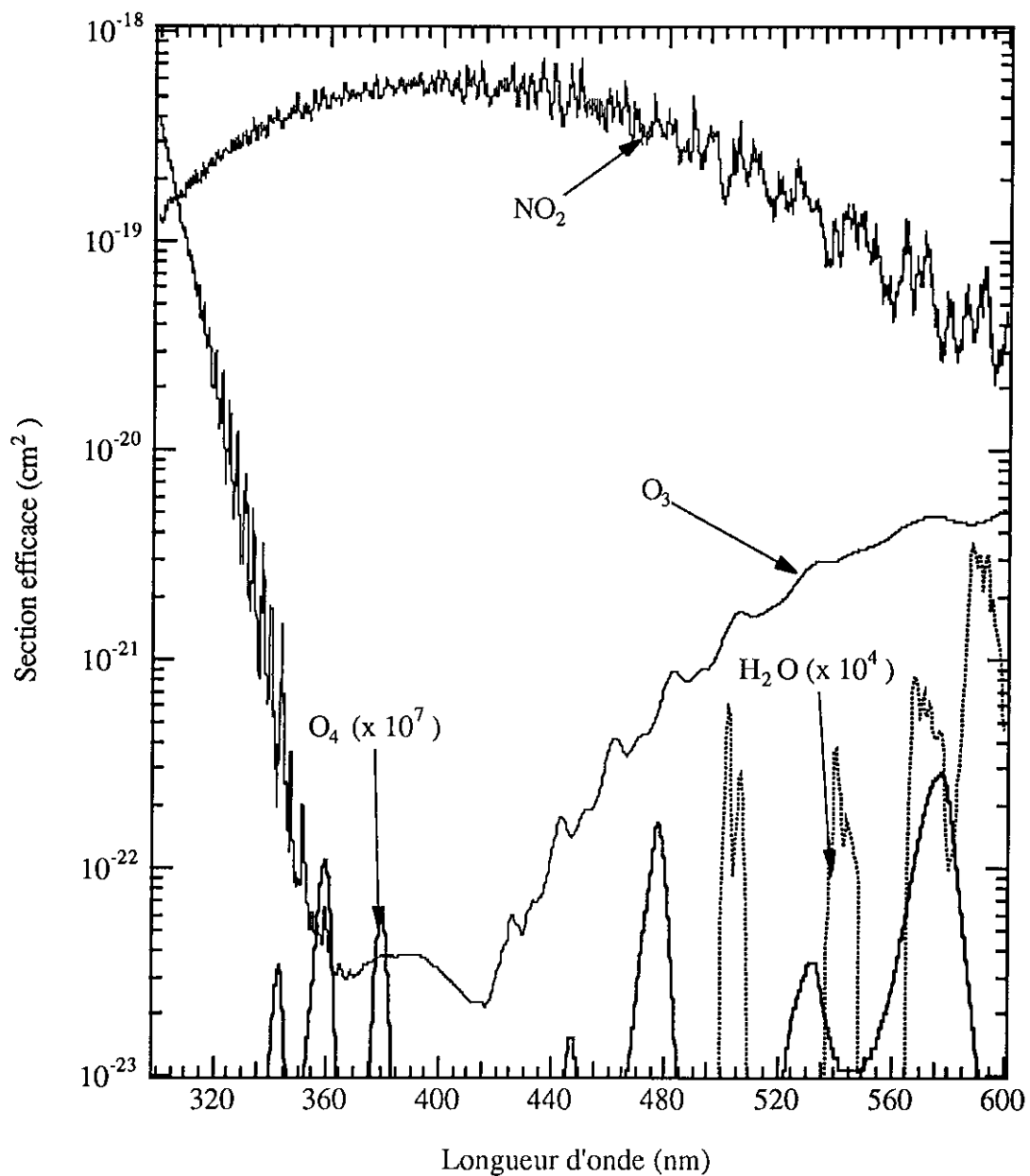
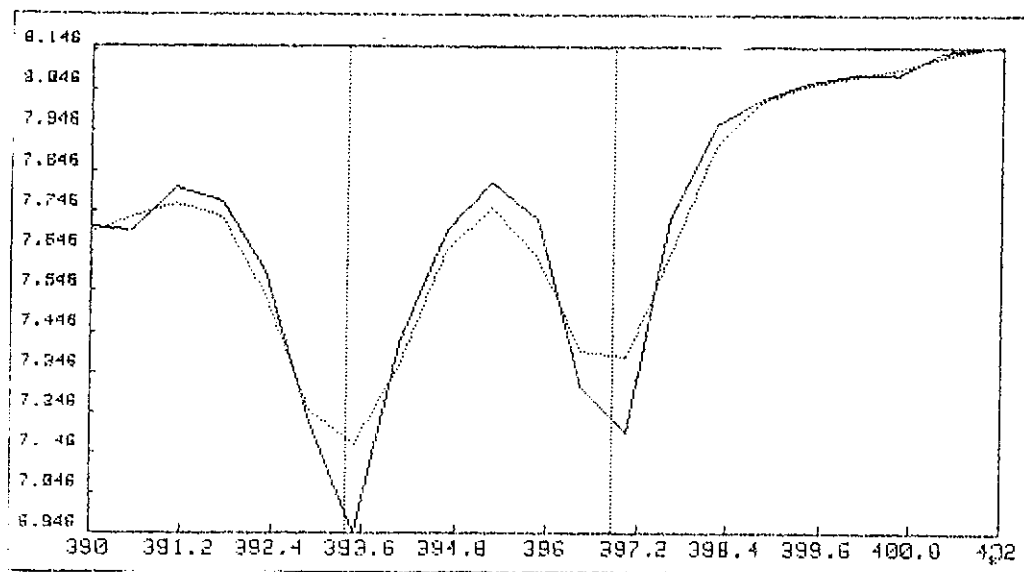
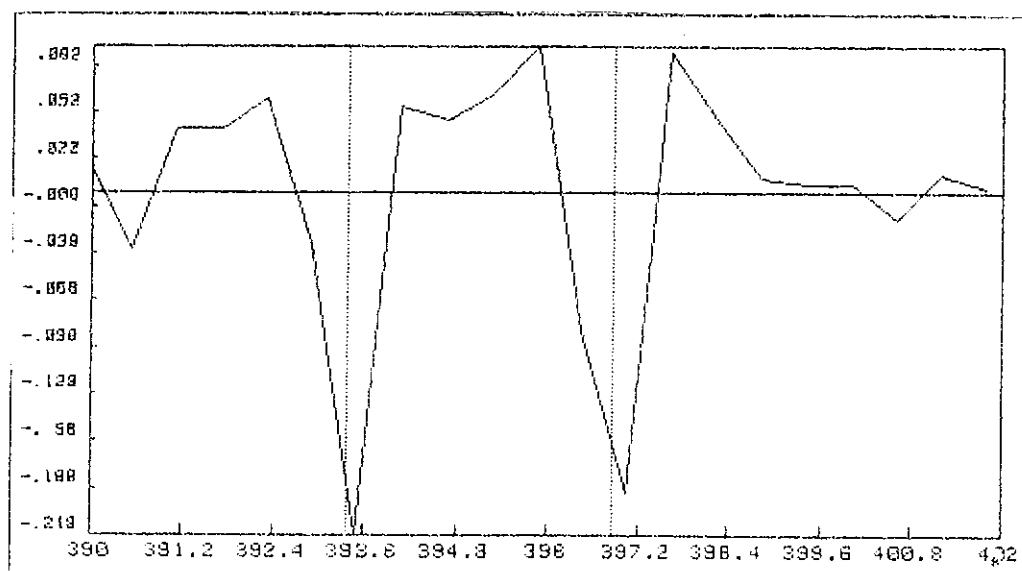


Figure 10: Les sections efficaces de O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O. Entre 400 et 600 nm, les structures de l'ozone et de O<sub>4</sub> sont à large bande, alors que celles de NO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O sont à bande étroite.



**Figure 11:** Deux raies de Fraunhofer intenses à 394 et 397 nm (traits pleins) sur le spectre de référence. Après filtrage passe bas (pointillés), les raies sont plus larges et moins intenses. L'effet est similaire à ce que donnerait la diffusion Raman sur les molécules, ou effet Ring.



**Figure 12:** La pseudo "section efficace" de l'effet Ring vers 395 nm, fabriquée en prenant la différence entre les deux courbes de la figure 11. On reconnaît les deux pics correspondants aux positions des raies de Fraunhofer à 394 et 397 nm.

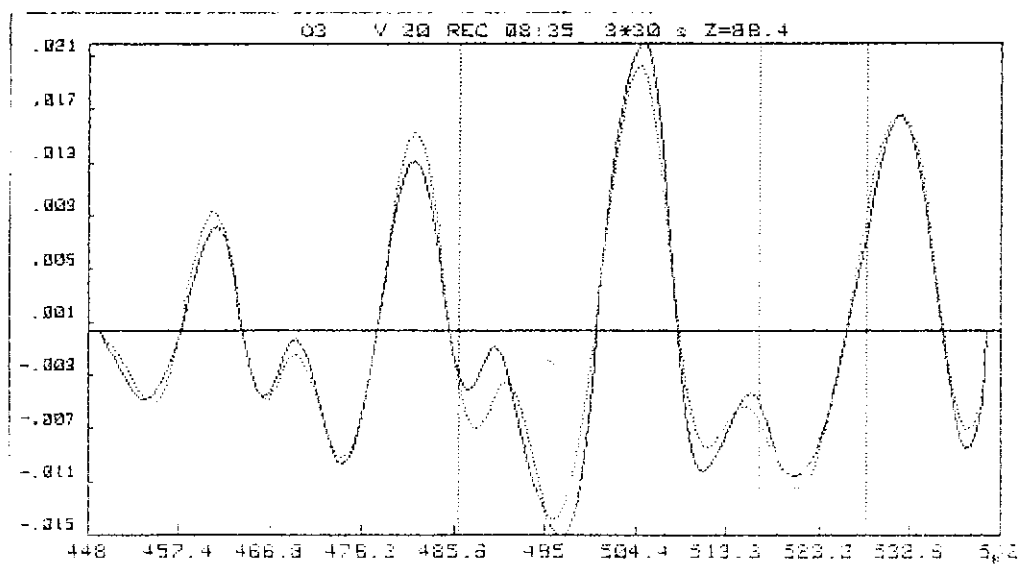
N°	Constituant	Domaine	Filtre passe haut	Filtre passe bas
<b>400-600 nm</b>				
1 1 <sup>er</sup> cycle	Ring	500-560	24	-
2	Ring	450-500	24	-
3	Ring	410-450	24	-
4	NO <sub>2</sub>	423-429, 434-450	14	.47
5	O <sub>3</sub>	450-560	40	.16
6	H <sub>2</sub> O	550-591	18	.75
7	O <sub>4</sub>	556-590	60	.23
8	O <sub>4</sub>	470-482	40	.23
9	H <sub>2</sub> O	498-513	14	.8
12	O <sub>3</sub>	450-560	40	.16
13	NO <sub>2</sub>	405-429, 434-450	14	.47
14	H <sub>2</sub> O	550-591	18	.75
16 2 <sup>ème</sup> cycle	Ring	500-560	24	-
17	Ring	450-500	24	-
18	Ring	410-450	24	-
21	O <sub>4</sub>	556-590	60	.23
22	O <sub>4</sub>	470-482	20	.23
23	H <sub>2</sub> O	550-591	18	.75
24	H <sub>2</sub> O	498-513	14	.8
26	O <sub>3</sub>	520-573	40	.16
27	O <sub>3</sub>	450-540	40	.16
29	NO <sub>2</sub>	405-429, 434-450	14	.47
<b>300 - 400 nm</b>				
32 1 <sup>er</sup> cycle	Ring	362-392	24	-
35	NO <sub>2</sub>	362-380	8	.47
36	O <sub>3</sub>	328-342	6	.55
38	O <sub>4</sub>	355-385	20	.25
40	NO <sub>2</sub>	362-380	8	.47
44 2 <sup>ème</sup> cycle	Ring	362-392	24	-
47	O <sub>3</sub>	315-335	6	.55
48	O <sub>3</sub>	328-342	6	.55
49	O <sub>4</sub>	355-385	20	.25
51	NO <sub>2</sub>	362-380	8	.47

Table 3: Les étapes de mesures. Deux domaines de mesures (UV: 300-400 et visible: 400-600 nm). Dans un premier temps, les constituants sont mesurés et soustraits progressivement. Dans un deuxième temps, les mesures sont effectuées sur un signal comportant uniquement le constituant.

La progression dans le cycle itératif des mesures est déterminée par l'aspect perturbateur de certains constituants. Par exemple, l'effet Ring perturbe la mesure de tous les constituants, surtout celle de  $\text{NO}_2$ . De plus, il est présent et très intense dans tout le domaine spectral étudié. Il sera donc soustrait en premier. La table 3 montre les étapes (colonne 1) et le domaine spectral (colonne 3) de mesure du constituant (colonne 2). Les valeurs des filtres passe haut et bas sont indiquées respectivement dans les colonnes 4 et 5. D'un façon générale, le domaine spectral de mesure a été divisé en deux parties: de 300 à 400 et de 400 à 600 nm, domaines où les quantités d'un même constituant sont significativement différentes dans les observations au zénith (le facteur d'amplification est différent: par exemple, pour l'ozone à  $90^\circ$  SZA, il vaut 17 à 510 et 10 à 330 nm).

L'itération permet de neutraliser certaines interférences entre constituants, par exemple entre  $\text{O}_3$  et  $\text{O}_4$  vers 570 nm.

Les figures 13 à 15 montrent les mesures de  $\text{O}_3$  à 510,  $\text{NO}_2$  à 450 et  $\text{O}_4$  à 470 nm, effectuées sur le spectre de la figure 8. La mesure (la section efficace multipliée par la quantité de constituant déterminée) est en pointillés, le signal en trait plein. Les incertitudes relatives de mesure ( $Q/R$ ) sont respectivement 1.4%, 5.3% et 3%. Remarquons que, par exemple pour l'ozone, la quantité de constituant varie avec la longueur d'onde. Cet effet apparait à distance zénithale solaire supérieure à  $88^\circ$  (le facteur d'amplification dépend de la longueur d'onde).



**Figure 13:** La mesure de l'ozone à 510 nm (étape 27). En pointillés, la section efficace. En trait plein, le signal. L'incertitude relative de la mesure est 1.4%.

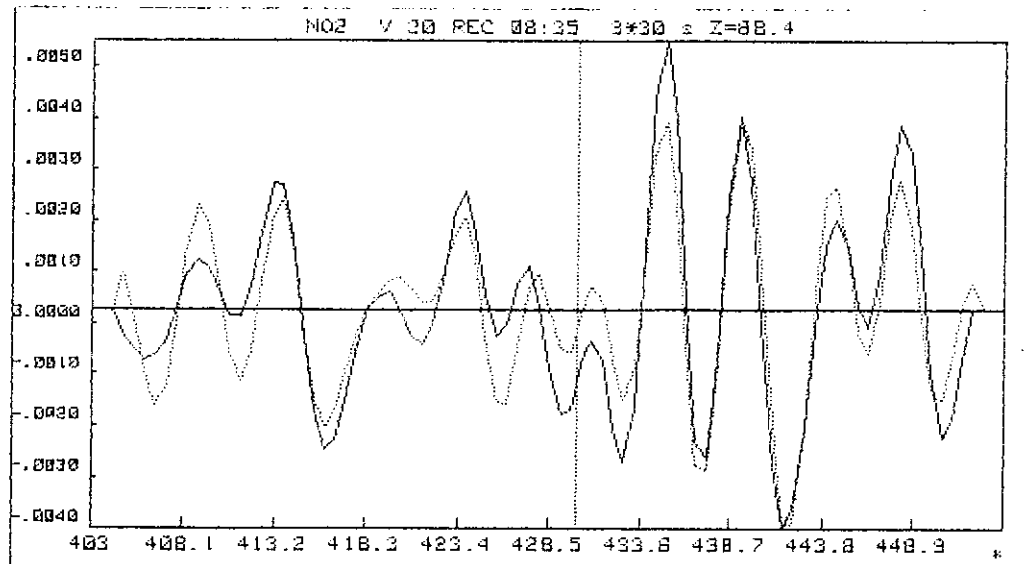


Figure 14: La mesure de NO<sub>2</sub> (étape 29, incertitude relative 5.3%)

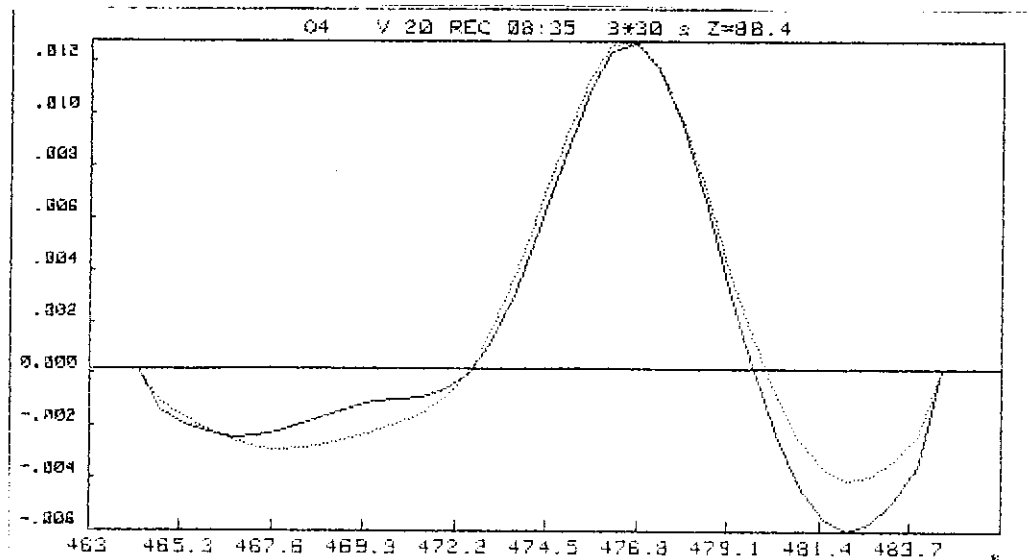


Figure 15: La mesure de O<sub>4</sub> à 470 nm (étape 22, incertitude relative 3%).

La figure 16 présente l'épaisseur optique avant (en pointillés) et après traitement (le résidu, en trait plein). Les grandes structures de l'ozone ont disparues dans le résidu. La pente régulière du résidu contient l'information des interactions Rayleigh et Mie qui ne sont pas corrigées pendant le traitement. Une pente négative ( $\Delta\tau / \Delta\lambda < 0$ ) indiquera un spectre observé plus "bleu" que le spectre de référence.

Sur la figure 17, les mêmes signaux sont filtrés comme pour la mesure de l'ozone (filtre passe haut:  $n=40$ , filtre passe bas:  $f=.16$ ). L'effet Ring a été soustrait des deux spectres pour faciliter la visualisation. Les structures de  $O_3$ ,  $O_4$ ,  $H_2O$  et  $NO_2$  ont disparu dans le résidu. Remarquons les domaines mal corrigés autour des raies de Fraunhofer intenses. Les structures résiduelles représentent moins de 1% du signal. Certaines structures sont semblables d'un spectre à un autre. Elle proviennent: soit de l'utilisation de mauvaises sections efficaces; soit d'un ou plusieurs absorbants que l'on n'aurait pas encore identifiés.

Le spectre corrigé des absorptions mais pas des interactions Rayleigh et Mie, est reconstitué en additionnant le résidu au spectre de référence. Les flux à 550, 450 et 350 nm sont conservés pour calculer un indice de couleur que l'on présentera au chapitre IV.

#### Colonnes d'absorbant suivant la ligne de visée

Chaque étape de l'analyse spectroscopique restitue la quantité  $Q$  et l'incertitude de mesure  $R$  (erreur quadratique moyenne) du constituant que l'on cherche à mesurer. Seuls les résultats des dernières étapes de mesures, c'est à dire l'ozone à 510 et 340 nm (étapes 27 et 48),  $NO_2$  à 440 et 370 nm (étapes 29 et 51),  $O_4$  à 576, 475 et 358 nm (étapes 21, 22 et 49),  $H_2O$  à 510 et 569 nm (étapes 24 et 23) et l'effet Ring à 380 nm (étape 44) sont conservés.

Nous allons présenter et discuter les résultats des mesures des colonnes suivant la ligne de visée de  $O_3$  à 510 nm (étape 27) effectuées pendant la campagne CHEOPS III entre le 10 janvier et le 9 mars 1990 à Kiruna (2000 observations, 58 jours de données).

La figure 18 (a) présente les mesures de l'ozone suivant la ligne de visée (58 jours superposés) en fonction de la distance zénithale du soleil. Les quantités augmentent progressivement pour atteindre un maximum vers  $92-93^\circ$  et deviennent constantes ou faiblement croissantes à angle supérieur. La figure (b) montre la précision des mesures (l'erreur quadratique moyenne  $R$ ,  $1\sigma$ ) en fonction de  $\chi$ . Elle est constante entre  $83$  et  $89^\circ$  SZA et augmente au-delà lorsque l'intensité lumineuse baisse.



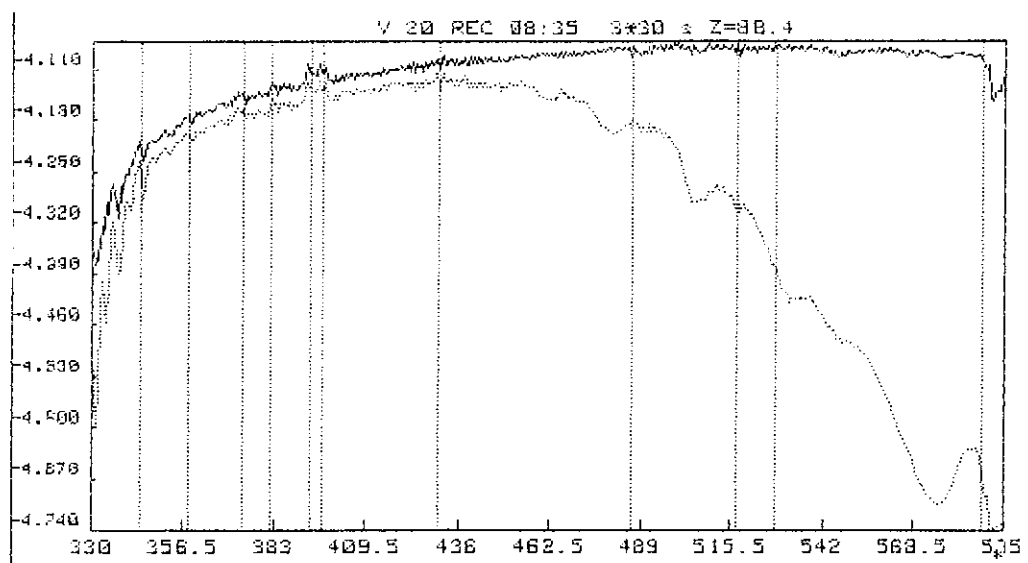


Figure 16: L'épaisseur optique avant (en pointillés) et après traitement (en trait plein). Les grandes structures de l'ozone dans le visible et dans l'UV sont corrigées.

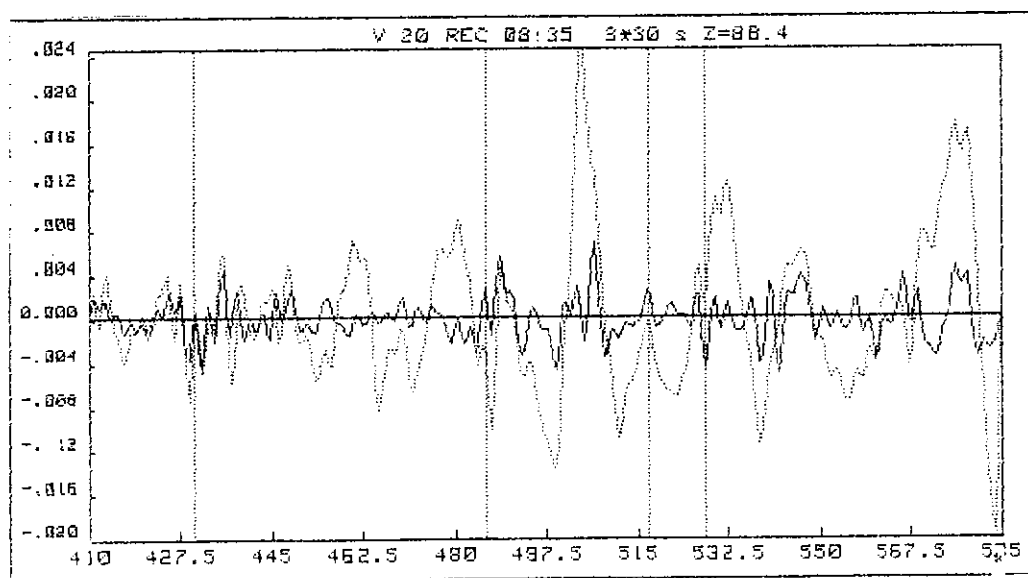
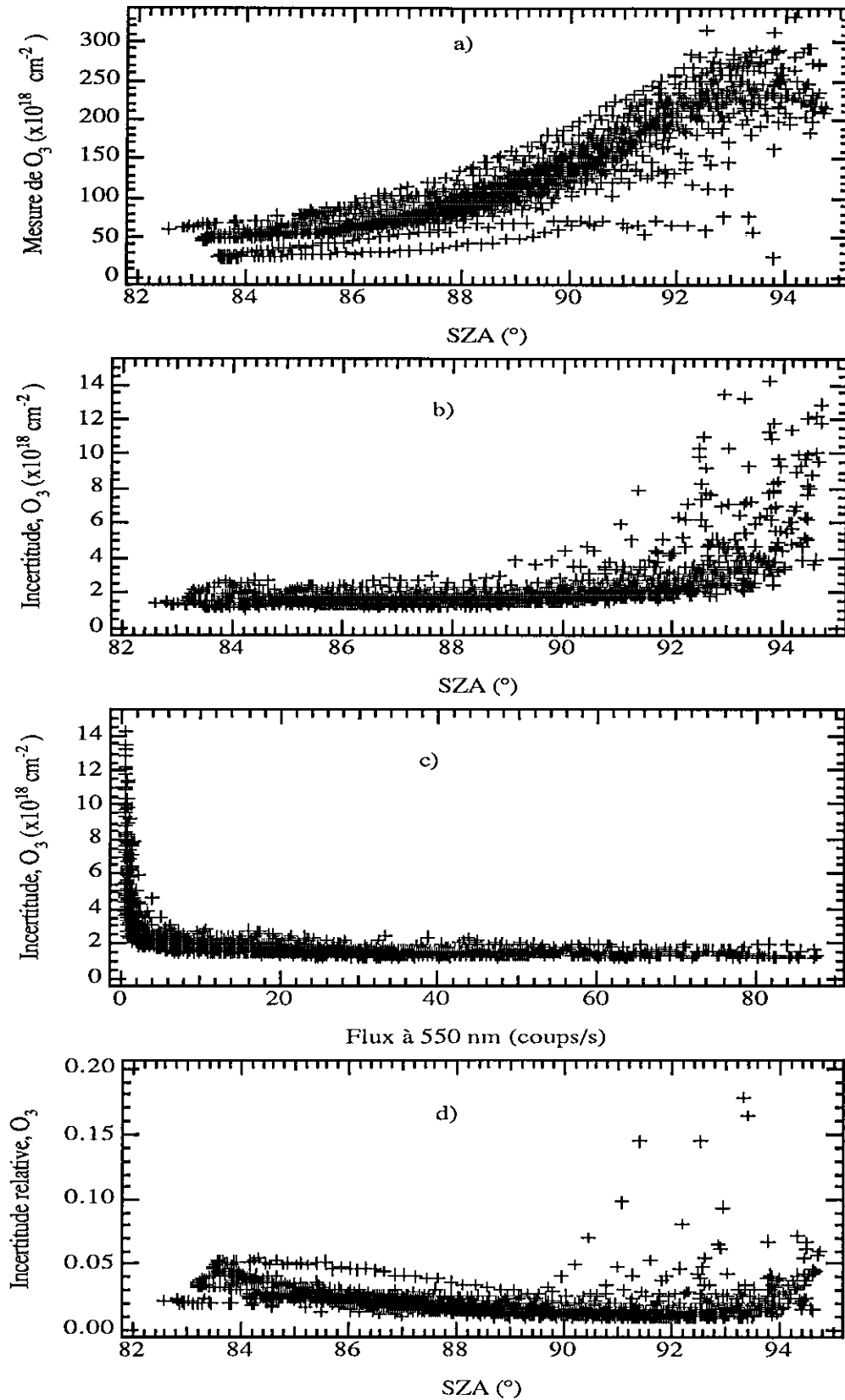


Figure 17: Le signal avant (en pointillés) et après traitement (en trait plein), filtrés comme pour la mesure de l'ozone. Le résidu présente des structures de l'ordre de 1% autour des raies de Fraunhofer les plus intenses et 0.3% au dehors.



**Figure 18:** Mesure (a) de l'ozone à 510 nm en fonction de la distance zénithale du soleil. L'incertitude absolue (b) est constante entre 84 et 91° SZA et augmente aux angles élevés. L'incertitude absolue varie comme l'inverse du flux à 550 nm (c). L'incertitude relative (d) est inférieure à 3% entre 88 et 91° SZA.

La figure (c) représente la précision des mesures en fonction du flux à 550 nm. Elle est constante pour des flux supérieurs à 10 coups/s et augmente brusquement à faibles flux où elle varie comme l'inverse du flux (entre 89 et 93° SZA). A angle supérieur à 93° SZA, l'incertitude due à la digitalisation du signal sur 12 bit n'est plus négligeable (<0.03% d'incertitude relative entre 83 et 91° SZA, 1% à 94). La figure (d) présente l'erreur quadratique moyenne relative (R/Q) en fonction de  $\chi$ . Les mesures entre 88 et 91° SZA sont obtenues avec une l'incertitude minimale de l'ordre de 2-3%.

## 5) CONCLUSION

Le SAOZ est un spectromètre UV-visible simple d'utilisation et autonome. C'est l'un des seuls instruments capable d'effectuer des mesures en continu de O<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub> depuis le sol, dans les régions polaires en hiver par tous temps. Les incertitudes relatives totales des mesures crépusculaires individuelles (entre 88 et 92° SZA) des quantités sur la ligne de visée de O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O et des flux corrigés des absorptions à 550, 450 et 350 nm sont données dans la table 4.

Mesure	Erreur systématique (%)	Erreur quadratique moyenne (%)	Erreur Totale (%)
O <sub>3</sub>	3	2	5
NO <sub>2</sub>	5	5	10
H <sub>2</sub> O	50	10	60
O <sub>4</sub>	10	3	13
Flux	-	0.3	0.3

Table 4: Les mesures et les incertitudes relatives.

La contribution la plus importante provient des incertitudes sur les sections efficaces (erreurs systématiques) pour tous les constituants. Ces erreurs sont présentes dans tous les résultats et interviennent comme une constante lorsque l'on cherche à comparer les mesures effectuées sur toute une période ou d'une année sur l'autre. Notre travail futur sera donc de trouver sinon de mesurer nous même des sections efficaces avec une meilleure précision que celles déjà existantes.

L'erreur quadratique moyenne ( $1\sigma$ ) est calculée pour des mesures individuelles. Les progrès possibles pour améliorer les mesures sont:

- la digitalisation du signal sur 14 bits (en cours d'installation);
- deux fois plus de résolution par l'utilisation d'une barrette de photodiodes de 1024 éléments.

Enfin, la méthode de traitement des spectres est en constante évolution. Dans le cadre d'un programme d'intercomparaison de méthodes de traitement organisé au mois de juillet 1991 par le NDSC (Network for Detection of Stratospheric Changes), les résultats des mesures par itération des constituants que nous sommes les seuls à utiliser, ont été comparés aux méthodes de mesure à variables multiples où les constituants sont mesurés simultanément. Quatre séries d'une vingtaine de spectres environ ont été distribués aux participants. Trois séries comprenaient des spectres observés (dont l'une par le SAOZ), la dernière, des spectres synthétiques. Les résultats des analyses (mesures de  $O_3$  et  $NO_2$  entre 400 et 500 nm) montrent que notre méthode donne des résultats comparables aux autres et souvent meilleurs en ce qui concerne les résidus. L'étude poursuit son cours. La conclusion préliminaire est que l'analyse effectuée par le SAOZ comporte deux domaines où des progrès sont nécessaires: les sections efficaces (principalement celle de  $NO_2$ ) et la méthode d'interpolation du recalage en longueur d'onde des spectres. Une méthode d'interpolation par un polynôme du quatrième degré (5 points), espérée plus performante, est à l'étude.

Nous disposons maintenant d'un instrument qui permet de mesurer, après correction des absorptions par les molécules, l'épaisseur optique de l'atmosphère sur la ligne de visée avec une incertitude de l'ordre de 0.3%. Cette épaisseur optique dépend des propriétés diffusantes des molécules et des particules de l'atmosphère et en particulier de la présence de nuages et de poussières dans la stratosphère. L'interprétation de ces observations n'est cependant pas directe. Elle nécessite l'emploi d'un modèle de transfert de rayonnement au développement duquel nous nous attacherons maintenant.



## **CHAPITRE II**

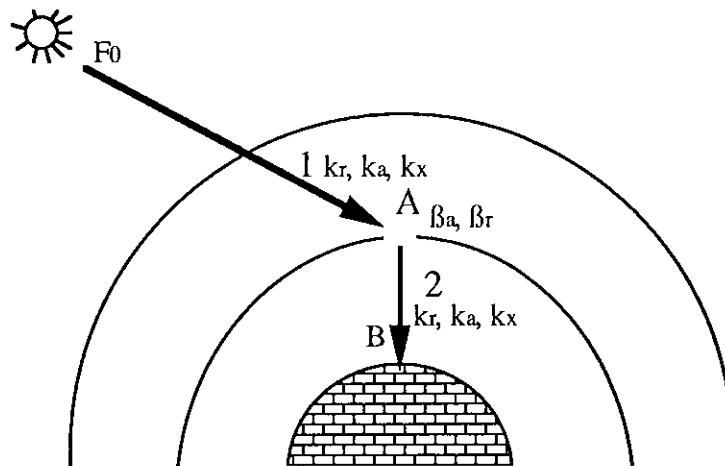
### **LE MODELE DE TRANSFERT RADIATIF**

## 1) PRINCIPE

Le modèle simule les observations spectroscopiques du ciel au zénith des absorbants, des nuages et des poussières. L'observateur regarde des rayons lumineux émis par le soleil (la source) et diffusés par les molécules et les particules au dessus de lui dans l'atmosphère. Les trajets optiques entre la source et l'observateur sont reconstitués. Les interactions successives (absorptions par les molécules, atténuations et diffusions par les molécules et les particules) entre les rayons lumineux et les constituants de l'atmosphère sont calculées et cumulées. Le modèle restitue l'épaisseur optique (paramètre sensible à la présence de nuages et de poussières) entre la source et l'observateur, ainsi que les facteurs d'amplifications des absorbants, soit le rapport entre les quantités suivant la ligne de visée et à la verticale du lieux d'observation.

La réfraction, la diffusion multiple et l'albédo ne sont pas pris en compte.

Observons le trajet d'un rayon seul lumineux qui est diffusé à  $Z$  km d'altitude (point A) et qui atteint le sol en B. Le soleil se trouve à une distance zénithale  $\chi$ . La courbure de la Terre est amplifiée pour faciliter la visualisation. Sur le trajet 1, c'est-à-dire entre la source et le point A, le flux lumineux  $F_0$  en provenance du soleil est atténué (atténuations Rayleigh ( $k_r$ ) et Mie ( $k_a$ )) et absorbé par les molécules ( $k_x$ ,  $x = O_3, NO_2, H_2O$  et  $O_4$ ). En A, le rayon est diffusé ( $\beta_r$  et  $\beta_a$ ) dans toutes les directions et en particulier vers le sol. Entre la diffusion en A et le sol en B, le rayon lumineux est de nouveau atténué ( $k_a, k_r, k_x$ ) par la basse atmosphère traversée verticalement.



**Figure 19:** Parcours d'un rayon lumineux diffusé à l'altitude  $Z$  (point A), observé depuis le sol (point B). Le flux lumineux  $F_0$  est atténué par diffusions Rayleigh ( $k_r$ ) et Mie ( $k_a$ ) et par l'absorption des molécules ( $k_x$ ,  $x = O_3, NO_2, H_2O$  et  $O_4$ ) le long des trajets 1 et 2. En A, le rayon est diffusé par les molécules ( $\beta_r$ ) et les particules ( $\beta_a$ ).

Le modèle simule les trajets de 60 rayons lumineux parallèles diffusés à chaque altitude de l'atmosphère décomposée en couches homogènes d'1 km d'épaisseur jusqu'à 60 km. Le flux reçu au sol est la somme des contributions individuelles. La distance zénithale  $\chi$  du soleil varie entre 0 et 95° et le domaine de longueur d'onde est l'UV-visible (250-600 nm).

## 2) FORMULATION MATHÉMATIQUE

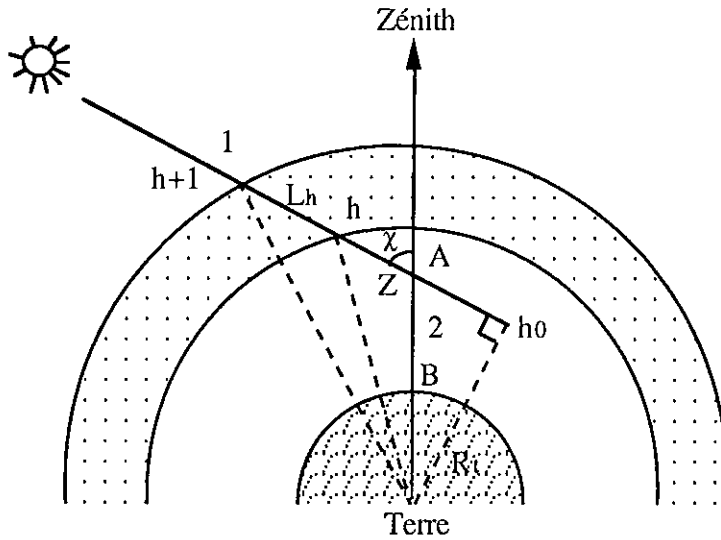


Figure 20: Calcul de la longueur  $L_h$  du trajet dans une couche située à l'altitude  $h$ .

Le trajet d'un rayon lumineux diffusé en A à l'altitude  $Z$  est représenté sur la figure 20 pour une distance zénithale solaire  $\chi$ . Le trajet du rayon lumineux (1) dans une couche d'1 km d'épaisseur située à  $h$  km du sol s'écrit:

$$L_h(Z, \chi) = \sqrt{(h+1)^2 - (h_0 + R_t)^2} - \sqrt{h^2 - (h_0 + R_t)^2},$$

où  $R_t$  est le rayon de la Terre et  $h_0$  l'altitude du point d'impact:

$$h_0 = (Z + R_t) \sin(180^\circ - \chi) - R_t.$$

Après diffusion en A, le trajet est vertical jusqu'en B (2) et  $L_h(Z, \chi)$  vaut 1 km.

L'atténuation du rayon lumineux à l'altitude  $h$  est le produit du trajet parcouru dans la couche par la somme des coefficients d'atténuation par unité de longueur  $k_i$ ,  $i = a$  (particules),  $r$  (Rayleigh) et  $x$  (absorptions). Entre la source et l'observateur, le rayon



lumineux a traversé toute l'atmosphère et l'épaisseur optique  $\tau$  du trajet est égal à la somme des contributions individuelles de chaque couche d'1 km d'épaisseur:

$$\tau(Z) = \sum_i (\sum_h (k_i(h) \cdot L_h(Z, \chi)))$$

A l'altitude  $Z$ , le rayon lumineux est diffusé dans toutes les directions. Le flux diffusé par unité d'angle solide est le produit du flux reçu dans la couche par la somme des coefficients de diffusions par unité d'angle solide Rayleigh  $\beta_r$  et Mie  $\beta_a$ . Le flux émis par unité de volume et reçu au sol par unité de surface varie comme l'inverse du carré de la distance de la source ( $1/Z^2$ ). Le volume d'atmosphère que l'observateur regarde à une altitude  $Z$  par unité d'angle solide varie en fonction du carré de la distance de la source ( $Z^2$ ). Le flux reçu au sol par unité d'angle solide ne dépend donc pas de l'altitude de la couche diffusante. Le flux reçu par unité de surface, de longueur d'onde et d'angle solide s'écrit:

$$F(Z, \chi) = F_0 \cdot e^{-\sum_i (\sum_h (k_i(h) \cdot L_h(Z, \chi)))} \cdot (\sum_j \beta_j(Z, \chi)) = F_0 \cdot e^{-\tau} \cdot (\sum_j \beta_j(Z, \chi))$$

La densité de colonne du constituant  $x$  sur la ligne de visée,  $N_x(Z, \chi)$ , s'écrit:

$$N_x(Z, \chi) = \sum_h n_x(h) L_h(Z, \chi)$$

où  $n_x(h)$  est la densité du constituant.

Le flux total observé au sol est la somme des contributions de chaque couche diffusante:

$$F(\chi) = \sum_Z F(Z, \chi)$$

La contribution relative de chacune des couches diffusantes de l'atmosphère dans le flux total observé au sol est représentée sous la forme d'une fonction de poids  $P(Z, \chi)$ :

$$P(Z, \chi) = \frac{F(Z, \chi)}{F(\chi)}$$

Pour calculer le nombre de molécules  $N_x(\chi)$  sur la ligne de visée, il faut appliquer la fonction de poids sur  $N_x(Z, \chi)$ :

$$N_x(\chi) = \sum_Z P(Z, \chi) N_x(Z, \chi)$$

La fonction de poids et la colonne suivant la ligne de visée  $N_x$  dépendent de la longueur d'onde d'observation. La couche moyenne de diffusion, pour une distance zénithale et à une longueur d'onde donnée, est définie par l'altitude du maximum de la fonction de poids.

Si  $N_{x,v}$  est la densité de colonne verticale du constituant  $x$ , le facteur d'amplification  $AMF_x(\lambda)$  s'écrit:

$$AMF_x(\lambda) = \frac{N_x(\lambda)}{N_{x,v}}$$

### 3) ENTREES DU MODELE

Les entrées du modèle sont les distributions verticales des interactions Rayleigh et Mie (atténuations et diffusions) et celles des constituants  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $O_4$  et  $H_2O$ .

L'atténuation Rayleigh  $k_r(h)$  (exprimée en  $cm^{-1}$ ) est le produit de la section efficace d'extinction Rayleigh  $\sigma_r$  par la densité de l'air  $n(h)$  (exprimée en molécules/ $cm^3$ ).  $\sigma_r$  est inversement proportionnel à la quatrième puissance de la longueur d'onde d'observation (Nicolet, 1982):

$$\sigma_r = \frac{4 \cdot 10^{-28}}{\lambda(3.916 + 0.074 \cdot \lambda + 0.05/\lambda)} \text{ cm}^2$$

où  $\lambda$  est exprimé en  $\mu m$ .

Le profil vertical de densité à la latitude  $60^\circ N$  en janvier est tiré du Handbook of Geophysics (1965). La figure 21 montre l'atténuation Rayleigh  $k_r(h)$  à 450 nm exprimée en  $km^{-1}$  en fonction de l'altitude.

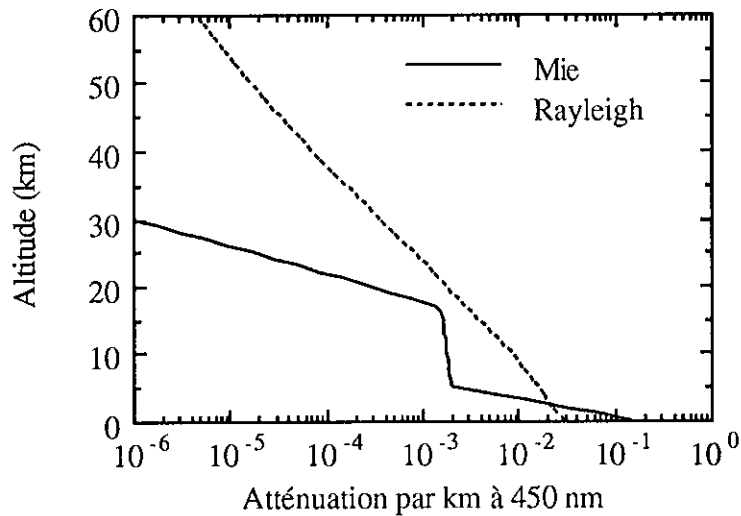


Figure 21: Profils verticaux des atténuations Rayleigh et Mie à 450 nm.

Le flux incident dans la couche à Z km est diffusé ( $\beta_r$ ) dans toutes les directions. On supposera que l'intégrale de la diffusion par un volume d'air sur tout l'espace est égal à l'atténuation dans ce volume (pas d'absorption). La fonction de phase  $\phi_r(\Theta)$  de la diffusion Rayleigh s'écrit (Handbook of Geophysics, 1965):

$$\phi_r(\Theta) = \frac{3}{4} (1 + \cos^2(\Theta)).$$

où  $\Theta$  est l'angle entre les radiation incidente et diffusée. Le rapport entre les flux diffusés à 180 et 90° du rayon incident vaut 2 (faible anisotropie).

Les interactions de type Mie dépendent de la longueur d'onde du rayonnement, de la dimension des particules et de leur indice de réfraction. Dans le modèle nous introduisons les coefficients d'atténuation  $k_a$  et de diffusion  $\beta_a$  et le coefficient de dépendance en longueur d'onde  $\alpha$  de la diffusion:

$$\frac{k_{\lambda 1}}{k_{\lambda 2}} = \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)^{-\alpha}$$

Le coefficient d'atténuation dans la troposphère a été tirée du Handbook of Geophysics (1965). Pour la stratosphère, nous avons utilisé des densités mesurées par occultation solaire en orbite par SAGE II à bord du satellite Nimbus 7 (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (NASA) , Lenoble, communication privée). Le coefficient d'atténuation a été supposé inversement proportionnel à la longueur d'onde ( $\alpha=1$ ), en accord avec la théorie de diffusion de Mie, simplifiée par van de Hulst (1957) lorsque le paramètre de Mie,  $\alpha_{\text{Mie}} = 2\pi r / \lambda$  (ou  $r$  est le rayon de la particule supposée sphérique), est de l'ordre de l'unité.

Le coefficient de diffusion  $\beta_a$  est calculé d'après l'atténuation  $k_a$ , en supposant que toute l'énergie reçue est rediffusée. La fonction de phase  $\phi_a$  de diffusion a été tirée de mesures à .85 et 1.65  $\mu\text{m}$  pratiquées dans la stratosphère polaire en hiver à l'aide d'un radiomètre embarqué en ballon (Herman et al. 1991). Cette fonction de phase est anisotrope ( $\beta_{180}/\beta_{90} = 5$ ). Le rapport entre les coefficients d'atténuation et de diffusion à 90° vaut 40.

La figure 21 montre la variation du coefficient d'atténuation Mie  $k_a$  à 450 nm en fonction de l'altitude. La diffusion Mie domine au voisinage du sol. En l'absence d'aérosols volcaniques, elle est faible par rapport à la diffusion Rayleigh dans la stratosphère. Les particules sont formées soit par des gouttes de vapeur d'eau, soit par des poussières. Dans les premières couches, la hauteur d'échelle des particules est de 2 km, celle des molécules de 8 km. L'atténuation Rayleigh domine dès 4-5 km, avec

toutefois vers 15 km, une couche de particules dite couche de Junge (1972). Au dessus de 20 km, l'atténuation due aux particules devient négligeable devant celle due aux molécules. Aux longueurs d'ondes plus courtes, la contribution de l'atténuation Rayleigh s'accroît du fait de la dépendance plus forte en longueur d'onde.

L'atténuation par les absorbants de l'atmosphère, principalement  $O_3$ ,  $O_4$ ,  $H_2O$  et  $NO_2$  dans le visible et le proche ultraviolet est définie par la relation :

$$k_x = \sigma_x(\lambda) \cdot n_x(h)$$

ou  $\sigma_x(\lambda)$  est la section efficace d'absorption du constituant  $x$  à la longueur d'onde  $\lambda$ . Les sections efficaces ont été présentées dans le chapitre II.

La concentration de  $O_3$  en fonction de l'altitude (figure 22) pour la latitude  $60^\circ N$  en hiver a été tirée du Handbook of Geophysics (1965). Le maximum est situé vers 20 km. La colonne verticale vaut  $1 \cdot 10^{19}$  molécules/cm<sup>2</sup> soit 370 UD (une Unité Dobson correspond à  $2.69 \cdot 10^{16}$  molécules/cm<sup>2</sup>).

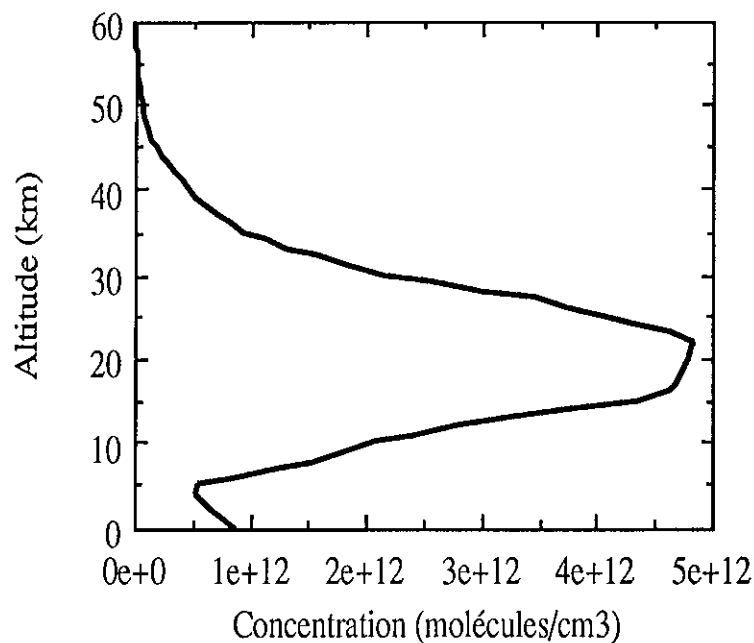


Figure 22: Profil vertical de l'ozone.

Le profil vertical de  $\text{NO}_2$  (figure 23) a été mesuré dans la stratosphère en septembre 1985 (longitude  $1^\circ$ , latitude  $44^\circ\text{N}$ ) par occultation solaire avec le spectromètre embarqué en ballon durant la campagne Globus en 1985 (Pommereau et Goutail, 1988c). Le maximum est situé vers 28 km d'altitude, donc 10 km au dessus de celui de l'ozone. La concentration troposphérique a été supposée nulle, ce qui n'est vrai que lorsqu'il n'y a pas de pollution. Ce profil, obtenu en été et à latitude moyenne, a été choisi parcequ'il n'existe aucune publication de profil vertical de  $\text{NO}_2$  dans les régions polaires en hiver. De plus, ce constituant varie fortement (quelquefois plus de 50 %) entre le lever et le coucher du soleil à la suite de réactions photochimiques. Ces variations ne sont pas introduites dans le modèle.

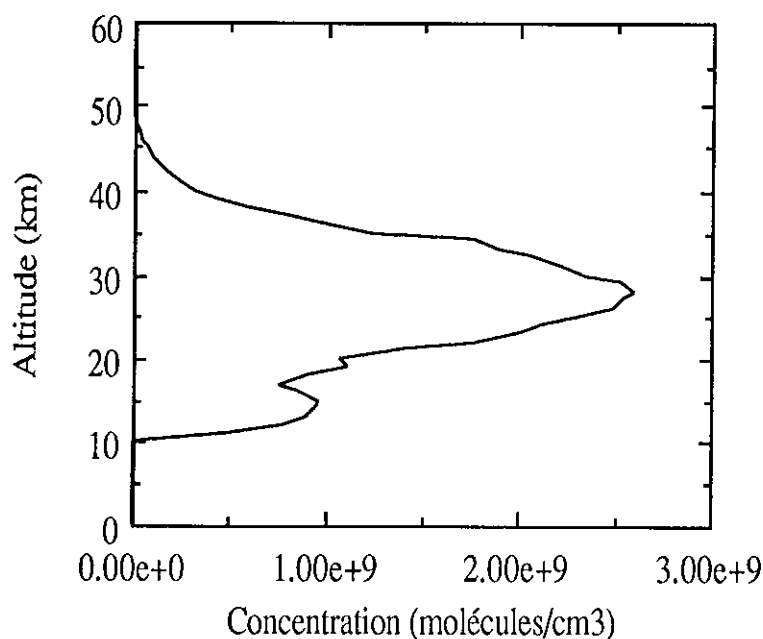


Figure 23: Profil vertical de  $\text{NO}_2$ .

La densité de  $\text{O}_4$  dépend de la densité de  $\text{O}_2$  au carré et de la température. A partir du profil vertical d'atténuation de  $\text{O}_4$  mesuré par occultation solaire avec le spectromètre embarqué en ballon durant la campagne Globus en 1985 (Pommereau and Goutail, 1988c), nous avons déterminé la loi de dépendance en température (en  $1/T$  en première approximation) et reconstitué le profil vertical ( $60^\circ\text{N}$ , en hiver) présenté sur la figure 24.  $\text{O}_4$  est un constituant essentiellement troposphérique.

Le profil vertical de la vapeur d'eau (figure 24) est reconstitué avec un rapport de mélange égal à 0.01 au sol, une hauteur d'échelle de 3 km entre 0 et 10 km qui correspond à une troposphère sèche (Handbook of Geophysics, 1965) et un rapport de mélange constant et égal à  $5 \cdot 10^{-6}$  entre 10 et 60 km mesuré à Kiruna ( $67^\circ\text{N}$ ) en hiver 1990 durant la campagne CHEOPS III (Ovarlez, 1991).

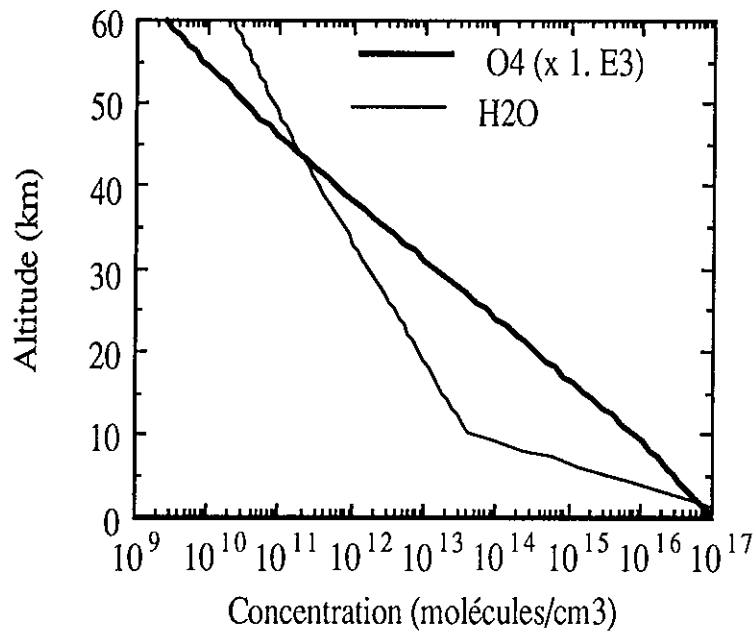


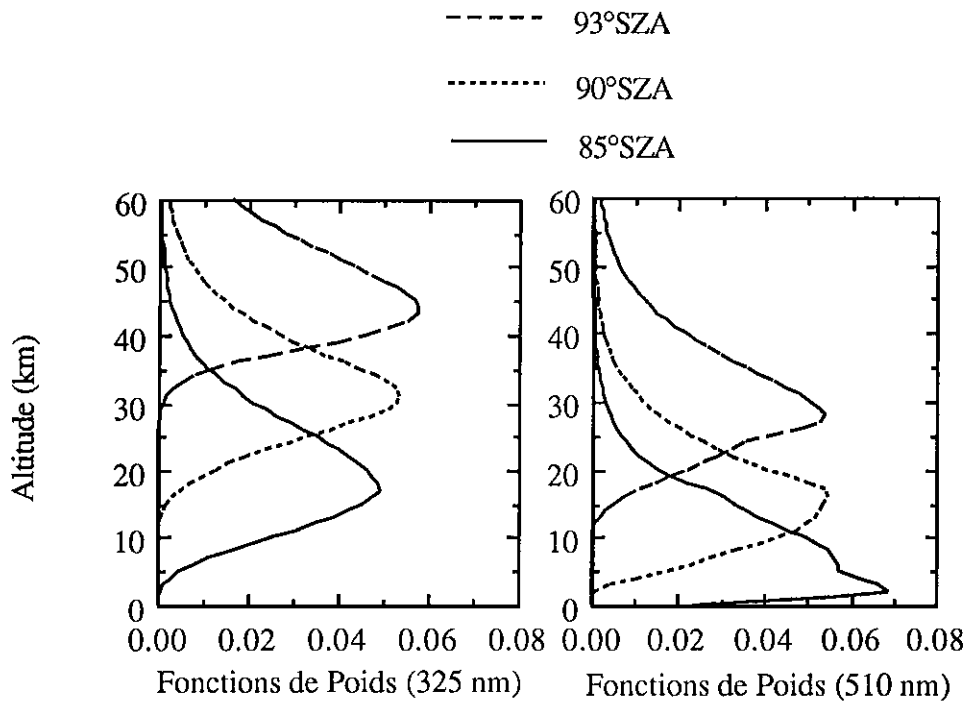
Figure 24: Concentrations de O<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O en fonction de l'altitude.

#### 4) RESULTATS DU MODELE

La table 5 présente les longueurs d'ondes (colonne 1) pour lesquelles le calcul du facteur d'amplification de l'élément (colonne 2) a été effectué ( $\tau$  indique un calcul relatif à l'épaisseur optique). Les colonnes 3 à 6 rappellent les sections efficaces des constituants.

Lambda (nm)	Elément	$\sigma_{O_3}$ $10^{-20} \text{ cm}^2$	$\sigma_{NO_2}$ $10^{-20} \text{ cm}^2$	$\sigma_{O_4}$ $10^{-22} \text{ cm}^2$	$\sigma_{H_2O}$ $10^{-26} \text{ cm}^2$
325	O <sub>3</sub>	1.41	31	0	0
334	O <sub>3</sub>	0.385	35	0	0
349	NO <sub>2</sub>	0.014	52.2	0	0
350	$\tau$	0.014	45	0	0
358	O <sub>4</sub>	0.00762	57	0.939	0
361	NO <sub>2</sub>	0.00629	57	0	0
379	O <sub>4</sub>	0.00618	59	0.414	0
409	NO <sub>2</sub>	0.0153	73.6	0	0
440	NO <sub>2</sub>	0.017	69.7	0	0
441	H <sub>2</sub> O	0.018	53	0	2.69
443	O <sub>3</sub>	0.018	46.3	0	1.87
450	$\tau$	0.0181	47	0	0
474	NO <sub>2</sub>	0.0493	50	0	0
475	O <sub>4</sub>	0.0926	45	1.63	0
495	NO <sub>2</sub>	0.0926	33.3	0	0
502	H <sub>2</sub> O	0.149	23.8	0	11.2
510	O <sub>3</sub>	0.162	26.4	0	0
541	H <sub>2</sub> O	0.306	8.95	0	5.88
550	$\tau$	0.346	9.78	0	0.444
569	H <sub>2</sub> O	0.477	5.65	0	7.50
576	O <sub>4</sub>	0.493	1.62	2.54	0

Table 5: Le calcul des facteurs d'amplification des constituants (colonne 2) est effectué aux longueurs d'onde indiquées dans la colonne 1. Les sections efficaces des absorbants sont présentés dans les colonnes suivantes.

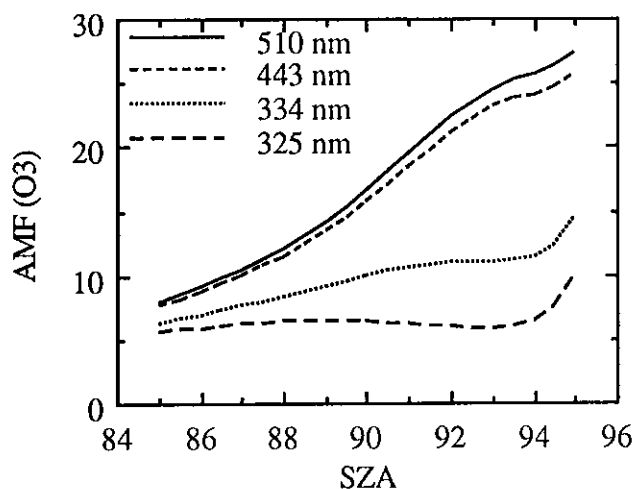


**Figure 25:** Exemples de fonctions de poids des observations du ciel au zénith calculées par le modèle dans le visible et dans l'UV, pour différentes positions du soleil. Le maximum correspond à l'altitude de la couche moyenne de diffusion.

La figure 25 présente les fonctions de poids des observations du ciel au zénith calculées par le modèle à 85, 90 et 93° SZA aux longueurs d'ondes 325 et 510 nm. Les interactions Rayleigh, qui dominent les interactions Mie et les absorptions par les molécules, déterminent l'atténuation et la diffusion du rayonnement. Les couches supérieures très ténues de l'atmosphère sont peu diffusantes. Elles contribuent donc relativement peu au flux total reçu au sol. Les couches inférieures plus denses de l'atmosphère, traversées sur des dizaines de kilomètres, atténuent le rayonnement. Le maximum de la fonction de poids, qui correspond à l'altitude de la couche moyenne de diffusion, est atteint aux altitudes intermédiaires. La couche moyenne de diffusion est épaisse (10-15 km). Lorsque la distance zénithale du soleil augmente ou que la longueur d'onde du rayonnement diminue, l'épaisseur optique dans les basses couches de l'atmosphère augmente. Le rayonnement diffusé à basse altitude est totalement atténué et l'altitude de la couche moyenne de diffusion augmente.

L'altitude de la couche moyenne de diffusion à 90° SZA et 325 nm est de 30 km et les rayons lumineux traversent verticalement l'atmosphère située en dessous. A 510 nm, elle n'est encore qu'à 15 km. Le rayonnement à 510 nm est relativement plus sensible à la composition de l'atmosphère aux altitudes inférieures à 30 km que celui à 325 nm.





**Figure 26:** Les facteurs d'amplification de l'ozone à différentes longueurs d'onde.

La figure 26 présente les facteurs d'amplification de l'ozone à 325, 334, 443 et 510 nm en fonction de la distance zénithale du soleil. A 325 nm, le facteur de masse d'air reste quasiment constant et égal à 6 entre 85 et 93° SZA car la couche moyenne de diffusion est déjà au dessus du maximum de l'ozone (18 km). A 510 nm, l'altitude de la couche moyenne de diffusion augmente entre 85 et 93° SZA et se rapproche du maximum de l'ozone. Le facteur d'amplification croît avec  $\chi$  et à 90° SZA, il vaut 16.6, soit presque 3 fois plus que dans l'UV, d'où l'intérêt de la mesure dans le visible au crépuscule.

La figure 27 présente les facteurs de masse d'air de NO<sub>2</sub> à 349, 409 et 495 nm en fonction de  $\chi$ . Le maximum de concentration de NO<sub>2</sub> est situé vers 30 km, altitude que la couche moyenne de diffusion à 409 nm atteint vers 91.5° SZA. A 90° SZA, le facteur d'amplification de NO<sub>2</sub> à 409 nm vaut 17.7 et croît avec  $\chi$ , d'où l'intérêt des mesures crépusculaires de NO<sub>2</sub>.

La figure 28 représente les facteurs de masse d'air de O<sub>4</sub> à quatre longueurs d'onde où il est possible de le mesurer: 358, 379, 475 et 576 nm. O<sub>4</sub> est un constituant principalement troposphérique, avec un très faible maximum secondaire au dessus de la tropopause, conséquence du minimum de température. Les facteurs d'amplification sont donc plus faibles que ceux de O<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub> au crépuscule. A 358 et 379 nm, ils tendent vers 1 après 90° SZA car la couche moyenne de diffusion est au dessus de la troposphère.

La vapeur d'eau se situe entièrement dans les trois premiers kilomètres de l'atmosphère, c'est à dire dans la partie verticale du trajet optique. La figure 29 présente les facteurs de masse d'air de H<sub>2</sub>O qui sont toujours très proches de l'unité à toutes les longueurs d'ondes à angle zénithal élevé.

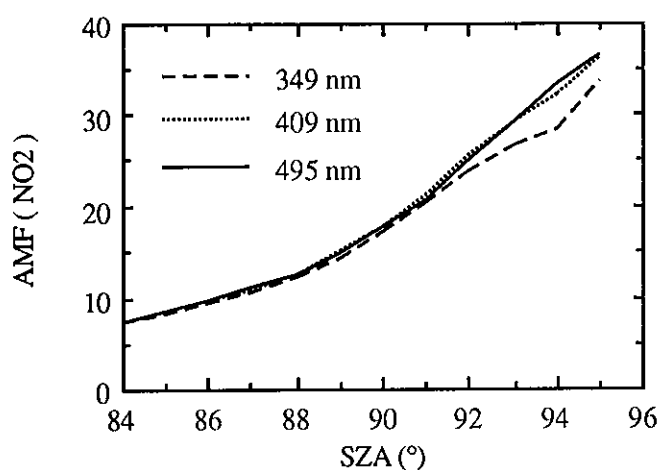


Figure 27: Les facteurs d'amplification de  $\text{NO}_2$  à différentes longueurs d'onde.

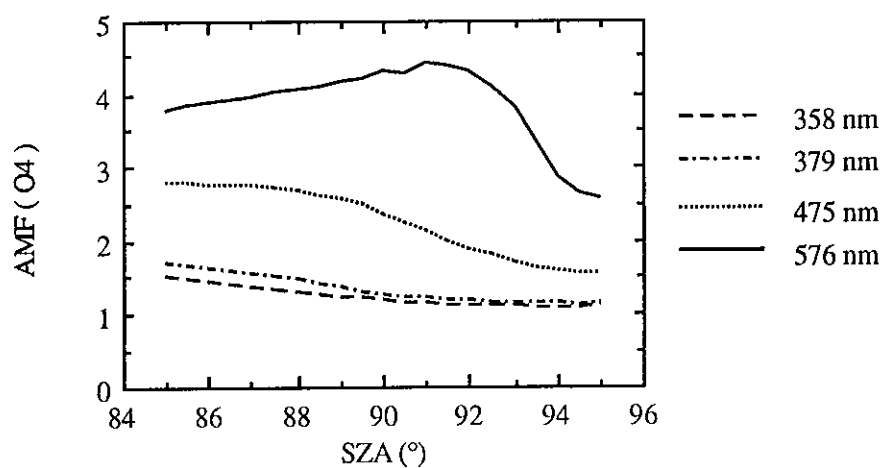


Figure 28: Les facteurs d'amplification de  $\text{O}_4$ .

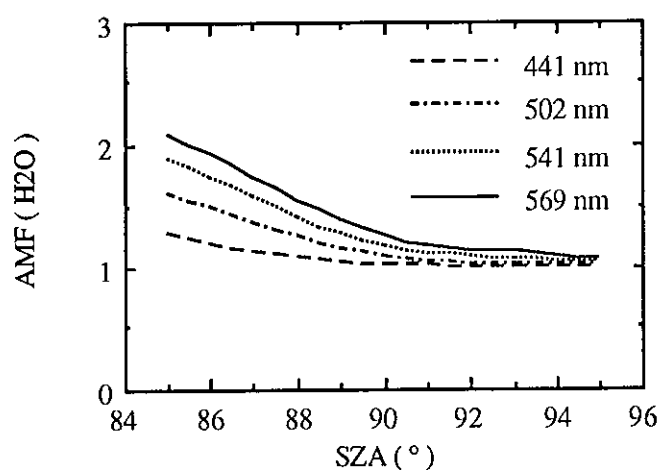


Figure 29: Les facteurs d'amplification de  $\text{H}_2\text{O}$ .

## 5) DISCUSSION DES RESULTATS

Les sources principales d'incertitudes du calcul des facteurs d'amplifications ont pour origine la réfraction, la diffusion multiple et les distributions verticales des constituants (entrées du modèle). La discussion portera sur la contribution relative de chacune dans le calcul du facteur d'amplification de l'ozone à 510 nm.

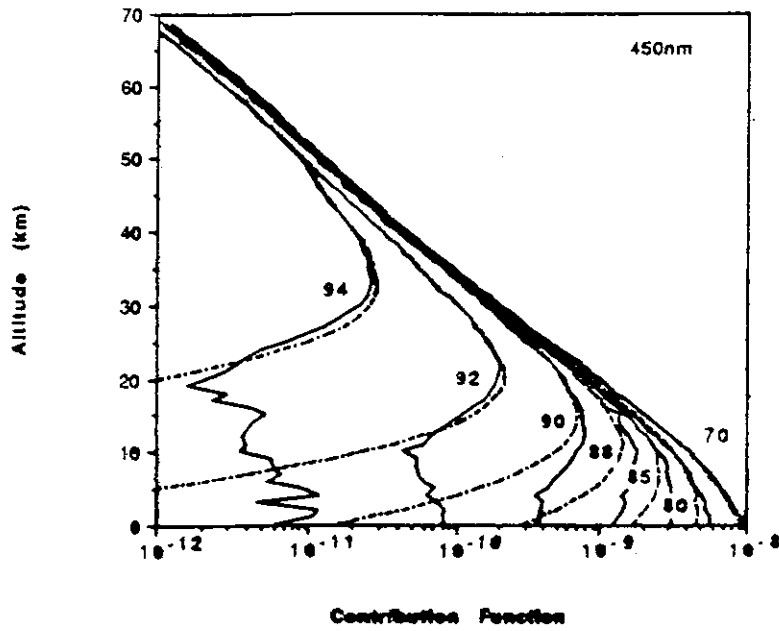
La réfraction qui n'a pas été introduite dans les calculs, introduit des incertitudes négligeables ( $<0.5\%$  à  $90^\circ$  SZA) aux angles inférieurs à  $92^\circ$  SZA et de l'ordre de 2 à 3 % aux angles supérieurs (Solomon et al., 1987).

La diffusion multiple fait intervenir deux types d'interactions: la diffusion multiple dans l'atmosphère et l'albédo des nuages troposphériques et du sol. Perliski (1991) a calculé les facteurs d'amplification à 450 nm d'un absorbant situé entre 20 et 25 km d'altitude à l'aide de trois modèles de transfert radiatif. Le premier (a) est un modèle de diffusion simple, similaire à celui qui est présenté ici. Le second (b), inspiré de Meier et al., 1982, fait intervenir la diffusion multiple dans une atmosphère plane, car pour une atmosphère sphérique, le calcul complet devient trop compliqué. Le dernier (c) reproduit par tirage Monte Carlo le trajet des photons que voit l'observateur (calcul très long rendu possible grâce à un ordinateur CRAY 2). La figure 30 présente les fonctions de poids à 450 nm calculées par les modèles a (en pointillés) et c (en trait plein) par beau temps. Les différences se situent dans les basses couches de l'atmosphère où le modèle de Monte Carlo calcule une contribution que ne fait pas apparaître le modèle a. Les facteurs de masse d'air calculés par beau temps à 450 nm pour un constituant situé entre 20 et 25 km d'altitude par les trois modèles a, b et c sont présentés sur la figure 31. Les conclusions de Perlisky sont les suivantes:

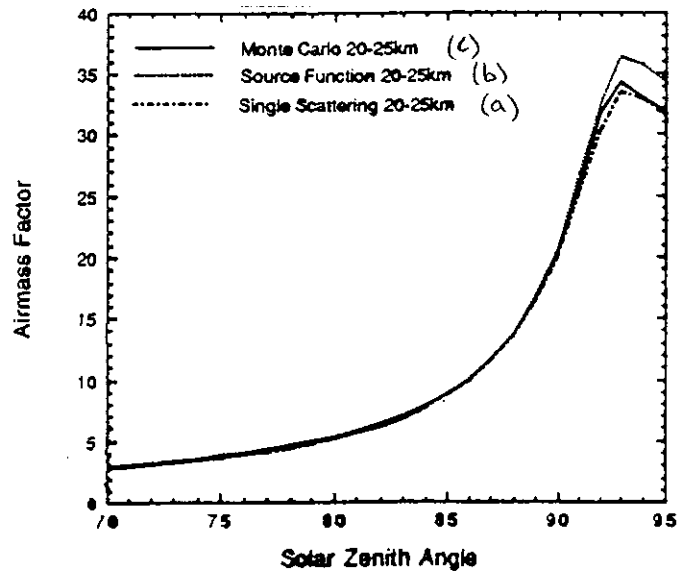
- la diffusion multiple en atmosphère plane (modèle b) surestime la contribution des basses couches;

- l'approximation du modèle simple est en accord avec les résultats du modèle Monte Carlo sauf lorsque la distance zénithale solaire est faible et que la diffusion multiple est élevée (nuages).

En conclusion, pour des constituants stratosphériques comme  $O_3$  ou  $NO_2$ , l'incertitude due à l'absence de la diffusion multiple dans le modèle simple est, à  $90^\circ$  SZA, de 0.5%. Pour des constituants troposphériques comme  $H_2O$  et  $O_4$ , la contribution de la diffusion multiple est du même ordre de grandeur que celle de la diffusion simple et les facteurs d'amplifications calculés par le modèle simple ne sont pas valables, excepté par ciel clair et entre  $89^\circ$  et  $95^\circ$  SZA où l'incertitude est de l'ordre de 5%.



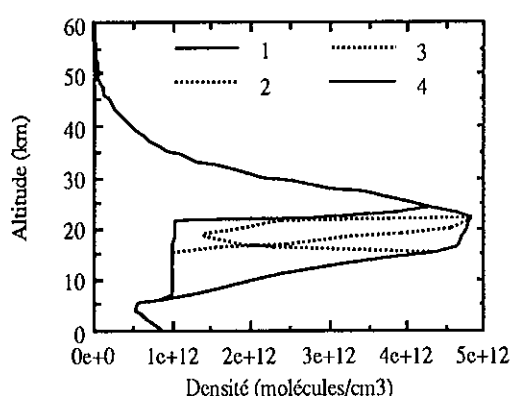
**Figure 30:** Les fonctions de poids calculées par le modèle simple (pointillé) et par le modèle avec tirage Monte Carlo (en trait plein) à 450 nm (d'après Perlisky, 1991). La distance zénithale du soleil est indiquée près des courbes.



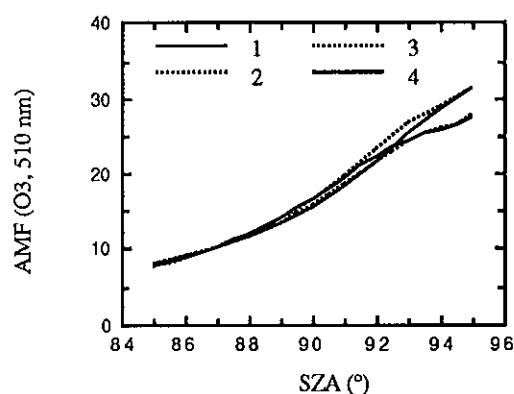
**Figure 31:** Les facteurs d'amplification à 450 nm d'un constituant situé entre 20 et 25 km d'altitude, calculés par le modèle avec tirage Monte Carlo (c), le modèle analytique avec diffusion multiple (b) et le modèle simple (a).

L'influence de la distribution verticale des constituants dans le calcul des facteurs d'amplification de l'ozone à 510 nm a été évaluée en introduisant dans le modèle, des profils verticaux de l'ozone différents du profil standard (figure 32). La distribution verticale initiale (profil 60° N en hiver, Handbook of Geophysics, 1965) a été modifiée de +10 à -50% en simulant des trous ou des apports. La figure 33 présente les facteurs d'amplification calculés dans chaque cas en fonction de  $\chi$ . L'écart par rapport à la valeur initiale est de 0.5% à 90° SZA et augmente rapidement à angle supérieur pour atteindre 14% à 95° SZA. Ces valeurs, qui correspondent aux incertitudes dues à la distribution verticale de l'ozone dans le calcul du facteur d'amplification à 510 nm, montrent que la mesure doit être effectuée à angle inférieur à 91° SZA où l'incertitude est inférieure à 2%.

L'influence de la distribution verticale de la densité de l'atmosphère, dans le calcul des facteurs d'amplification de l'ozone à 510 nm, a été évaluée en introduisant dans le modèle, des profils verticaux de température différents du profil standard. La densité de l'atmosphère dépend de la température, qui varie largement en fonction de la latitude et de la saison (de 190 à 225 K) et de la pression, qui varie relativement beaucoup moins (quelques % seulement). Les variations de densité modifient les interactions Rayleigh. Les profils de températures de la figure 34 (très froids: jusqu'à 200 et très chauds: 225 K dans la basse stratosphère) ont été introduits dans le modèle, pour évaluer l'incertitude due à la distribution verticale de densité dans le calcul des facteurs d'amplification de l'ozone à 510 nm. La figure 35 présente les résultats de ces calculs en fonction de  $\chi$ . L'écart est de 0.8% à 90° SZA et augmente à angle supérieur, sans dépasser 3%.



**Figure 32:** Profils verticaux de l'ozone: le profil standard (1), la partie basse du profil a été enlevée (2), un trou au centre de la couche (3) et un profil extrême (4) où toute la partie inférieure a été coupée.



**Figure 33:** Les facteurs de masse d'air calculés pour l'ozone à 510 nm pour des profils verticaux de concentration présentés sur la figure 32.

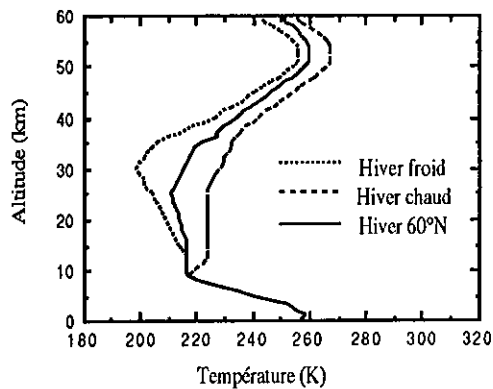


Figure 34: Les profils verticaux de températures introduits dans le modèle pour calculer l'influence de l'atténuation Rayleigh sur le calcul du facteur d'amplification de l'ozone à 510 nm.

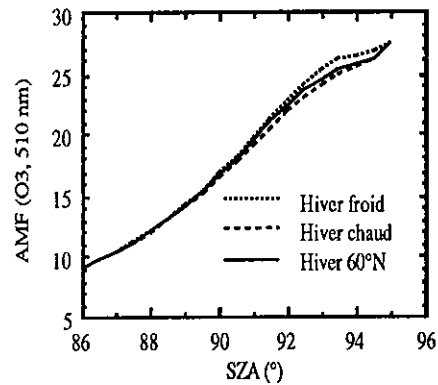


Figure 35: Les facteurs d'amplification de l'ozone à 510 nm calculés par le modèle pour les profils verticaux de température présentés sur la figure 34.

Afin de faire un bilan des incertitudes de calcul du facteur d'amplification de l'ozone à 510 nm, nous avons représenté sur la figure 36, les contributions relatives de chacune des sources d'incertitudes en fonction de la distance zénithale du soleil. Les contributions dues aux incertitudes sur le profil de température, la distribution verticale de l'ozone, la réfraction et la diffusion multiple sont représentées en pointillés. La contribution de loin la plus importante au delà de  $91^\circ$  SZA est celle de l'erreur sur la distribution verticale de l'ozone et non la réfraction ou la diffusion multiple. Cela montre que le modèle simple est suffisant puisque l'on ne peut connaître la distribution verticale de l'ozone. L'incertitude totale est représentée en trait plein. A  $90^\circ$  SZA, le modèle calcule le facteur d'amplification de l'ozone dans le visible avec une précision de 3 %.

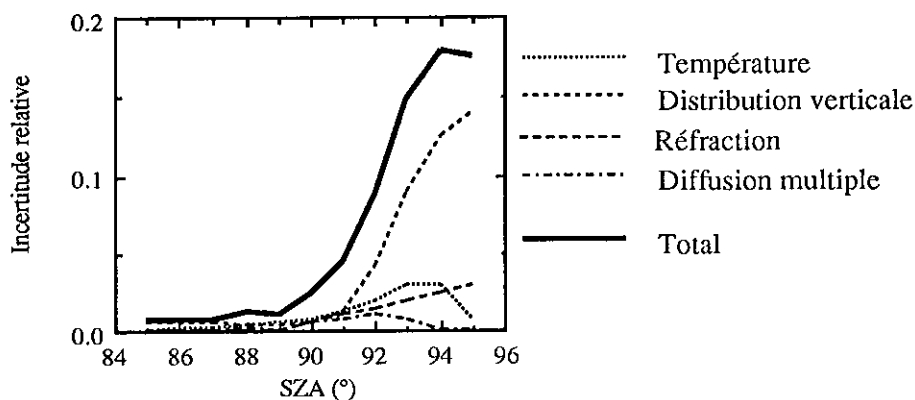


Figure 36: Contributions relatives des incertitudes de calcul du facteur d'amplification de l'ozone à 510 nm.

## 6) APPLICATION DES RESULTATS DU MODELE AUX OBSERVATIONS

Les facteurs d'amplification calculés par le modèle permettent de retrouver les densités de colonne verticale des constituants à partir des observations au zénith. L'interprétation des observations de l'ozone à 510 nm et de NO<sub>2</sub> à 450 nm permettra de valider le modèle. Pour cela, nous disposons des mesures effectuées par le SAOZ durant la campagne CHEOPS III à Kiruna en hiver 1990.

### L'ozone

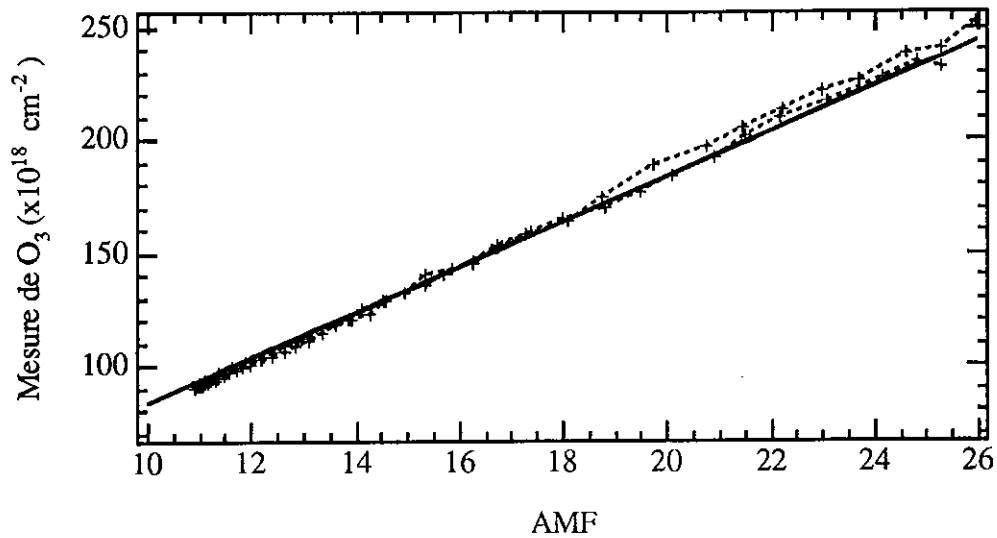
Le SAOZ mesure la quantité de constituant sur la ligne de visée par rapport à celle contenue dans le spectre de référence. Les facteurs d'amplification calculés par le modèle permettent de déterminer la quantité résiduelle de constituant dans le spectre de référence par la méthode de la droite de Bouguer-Langley, qui consiste à chercher les coefficients de la droite de corrélation entre la quantité mesurée  $N_{x,mes}(\chi)$  et le facteur de masse d'air  $AMF_x(\chi)$  du constituant  $x$ . La figure 37 présente les mesures de l'ozone à 510 nm effectuées le 23 janvier 1990 en fonction du facteur d'amplification. Le fait que les mesures s'alignent sur une droite démontre la validité du modèle. L'équation de la droite s'écrit:

$$N_{O3,mes}(\chi) = N_{O3,v} AMFO3(\chi) - N_{O3,réf}$$

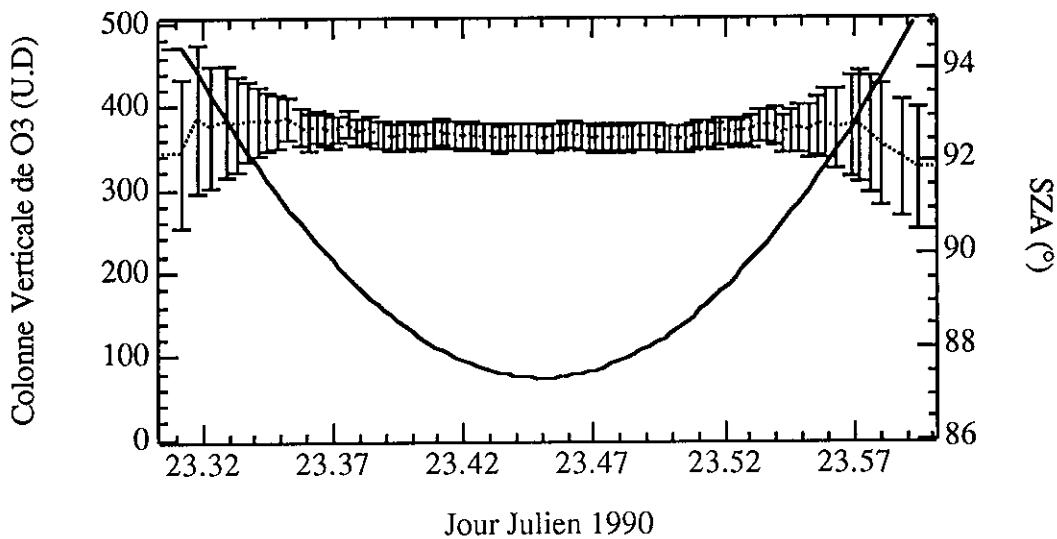
où  $N_{O3,réf}$  est la quantité d'ozone dans le spectre de référence.

La pente de la droite correspond à la quantité verticale  $N_{x,v}$ . L'extrapolation de la droite à la valeur  $AMF = 0$  est la quantité  $N_{O3,réf}$  qui vaut  $16 \pm 2 \cdot 10^{18}$  molécules/cm<sup>2</sup>.

La figure 38 présente les résultats des mesures de la colonne verticale de l'ozone effectuées le 23 janvier 1990 à Kiruna par le SAOZ, après réduction par le facteur d'amplification. Nous avons observé régulièrement ce type de figure durant toute la campagne. L'ozone, qui est un constituant photochimique stable, est presque constant tout au cours de la journée, autour de 360 UD (soit  $1 \cdot 10^{19}$  molécules/cm<sup>2</sup>) ce jour là. Les barres d'incertitudes comprennent les contributions dues à la mesure (erreur quadratique moyenne,  $1\sigma$ ), à la quantité de constituant dans le spectre de référence et au calcul du facteur d'amplification par le modèle. L'échelle de droite correspond à la distance zénithale du soleil représentée en trait plein. L'erreur relative est minimale et inférieure à 7% entre 87 et 91° SZA et augmente à angles supérieurs.



**Figure 37:** Droite de Bouguer-Langley pour la mesure de l'ozone à 510 nm. Les observations ont été effectuées le 23 janvier 1990 à Kiruna. Le fait que les mesures s'alignent sur une droite démontre la validité du modèle.



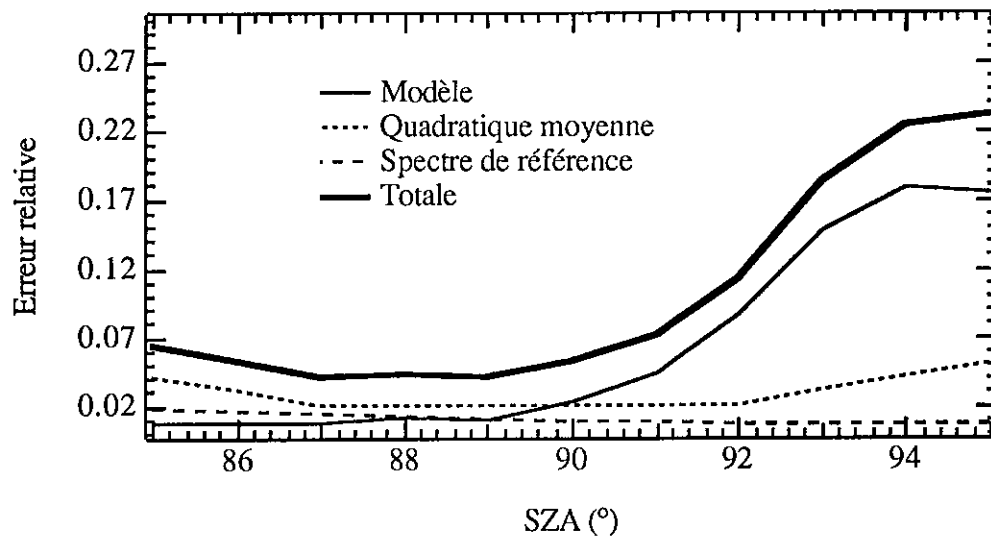
**Figure 38:** Mesures de la colonne verticale de l'ozone effectuée par le SAOZ le 23 janvier 1990. Les mesures sont stables tout au long de la journée à 360 UD soit  $1 \cdot 10^{19}$  molécules/cm<sup>2</sup>.



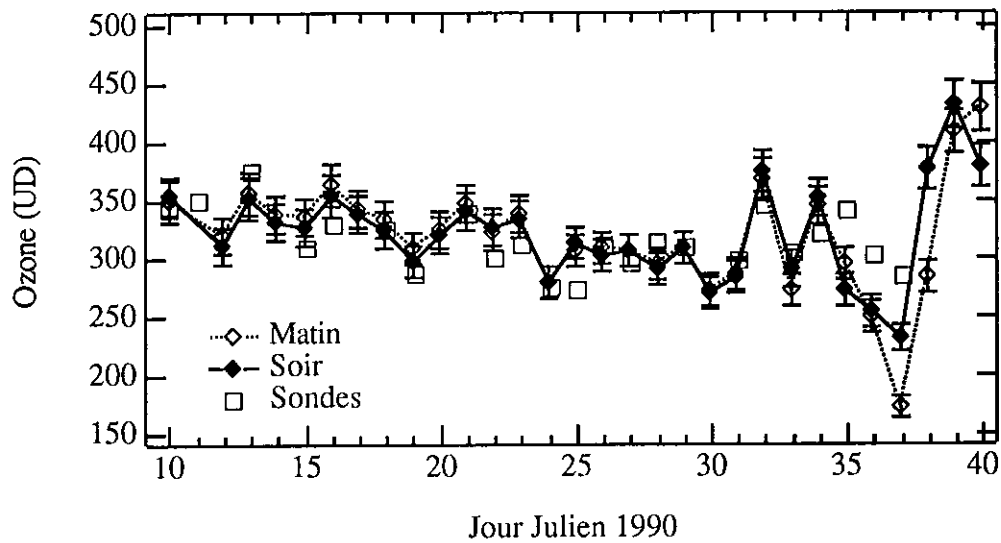
Les contributions respectives à l'incertitude sur la colonne verticale de l'ozone et leurs origines sont représentés sur la figure 39 en fonction de  $\chi$ . L'incertitude relative totale est inférieure à 7% entre 87 et 91° SZA. Aux angles supérieurs à 91° SZA, la contribution due aux incertitudes sur le calcul du facteur d'amplification domine. Aux angles faibles, ce sont celles dues aux incertitudes sur la mesure et sur la quantité de constituant dans le spectre de référence.

Une valeur moyenne crépusculaire de l'ozone est calculée sur  $n$  observations (de 4 à 8 en général) obtenues durant le même crépuscule, entre 87 et 91° SZA, où l'incertitude relative des mesures individuelles est minimale. L'incertitude quadratique moyenne est ainsi diminuée d'un facteur  $1/\sqrt{n}$ . L'incertitude relative de la colonne verticale d'ozone crépusculaire moyennée est inférieure à 5%. A cette valeur, il faut ajouter l'incertitude sur la section efficace de l'ozone dans le visible qui est de 3% et qui ne dépend pas de la température. La figure 40 présente les résultats de la campagne CHEOPS III entre le 10 janvier et le 9 mars 1990. Les quantités verticales mesurées par différents sondages effectués en ballon ont été rajoutées sur la figure. Les valeurs se recoupent excepté le 6 janvier, jour d'un mini-trou d'ozone au dessus de la Scandinavie qui est un cas particulier que nous aborderons au chapitre suivant.

Nous avons démontré que le SAOZ mesure deux fois par jour la colonne verticale d'ozone avec une incertitude inférieure à 8%, ce qui est rendu possible grâce au modèle de transfert radiatif simple qui calcule le facteur d'amplification de l'ozone à 510 nm avec une incertitude inférieure à 5% entre 87 et 91° SZA. Nous avons démontré la validité de ce modèle en comparant les calculs avec les observations effectuées par le SAOZ.



**Figure 39:** Les contributions des incertitudes sur la mesure de l'ozone total dans le domaine visible en fonction de la distance zénithale solaire.



**Figure 40:** Les mesures de l'ozone effectuées par le SAOZ durant la campagne CHEOPS III, comparées aux sondages effectués en ballon.

## NO<sub>2</sub>

La figure 41 montre les mesures de densités de colonne sur la ligne de visée de NO<sub>2</sub> effectuées le 30 janvier 1990 à Kiruna par le SAOZ en fonction du facteur d'amplification calculé par le modèle. A angles zénithaux (donc à facteurs d'amplification) identiques, les valeurs du matin et du soir ne sont pas égales. Ce type de figure a été observé tous les jours et indique la présence d'une variation diurne de NO<sub>2</sub>. Le matin, le soleil éclaire la stratosphère et NO<sub>2</sub> se dissocie partiellement en NO, d'où une diminution rapide de NO<sub>2</sub> (1). Au cours de la journée, NO<sub>2</sub> augmente sous l'effet de la photodissociation de N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (2) puis se stabilise au cours de la journée (3). N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> se recombine de nuit (Pirre et al., 1990). La droite de Bouguer-Langley est calculée sur les valeurs du soir, car NO<sub>2</sub> est alors plus stable. L'alignement des points de mesures du soir sur une droite démontre que le facteur d'amplification calculé est valable. La quantité de NO<sub>2</sub> dans le spectre de référence est égal à  $1.5 \pm 0.5 \cdot 10^{15}$  molécules/cm<sup>2</sup>.

Les quantités verticales en fonction du temps sont représentées sur la figure 42. La distance zénithale du soleil est représentée par la courbe en trait plein (échelle de droite). La variation diurne de NO<sub>2</sub> apparaît de manière plus distincte que précédemment: une augmentation le matin, une stabilisation dès midi, puis une petite décroissance le soir. De nombreuses observations durant la campagne ont montré ce type de variation, avec quelquefois un équilibre à mi-journée qui se prolonge jusqu'au soir. Certains jours très pollués (jusqu'à  $10^{16}$  molécules/cm<sup>2</sup> dans la troposphère), nous avons remarqué des variations tout-à-fait différentes et d'amplitudes beaucoup plus importantes. Le profil vertical de NO<sub>2</sub> est alors composé de deux maximums, l'un dans la stratosphère et l'autre dans la troposphère. Le facteur d'amplification calculé par le modèle n'est alors plus valable.

Les incertitudes sur le calcul du facteur d'amplification de NO<sub>2</sub> à 450 nm sont principalement dues à la variation diurne et au profil vertical du constituant. La réfraction et la diffusion multiple contribuent comme pour l'ozone pour des quantités inférieures à 5% (Solomon et al., 1987, Perlisky, 1991). La discussion sur les incertitudes de mesure de NO<sub>2</sub> est donc restreinte, car nous ne connaissons pas le profil de NO<sub>2</sub> en hiver dans les régions polaires ni sa variation diurne. Cependant, le fait que les points de mesure de l'après midi s'alignent sur une droite de Bouguer-Langley, confirme que le maximum de NO<sub>2</sub> est situé à haute altitude. Les observations, comparées avec celles d'un SAOZ embarqué en ballon (15 vols prévus en hiver 1991-92 à Kiruna durant la campagne EASOE, dont 4 déjà effectués) permettront de déterminer la variation diurne de NO<sub>2</sub> en régions polaires en hiver afin de l'inclure dans le modèle.

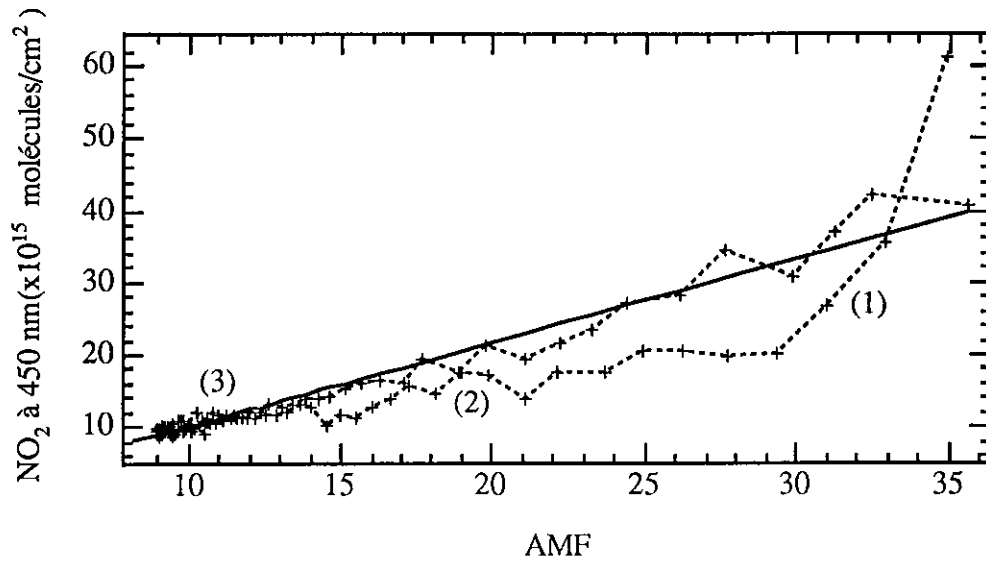


Figure 41: Mesures à 450 nm de la colonne de  $\text{NO}_2$  sur la ligne de visée en fonction du facteur d'amplification calculé par le modèle.

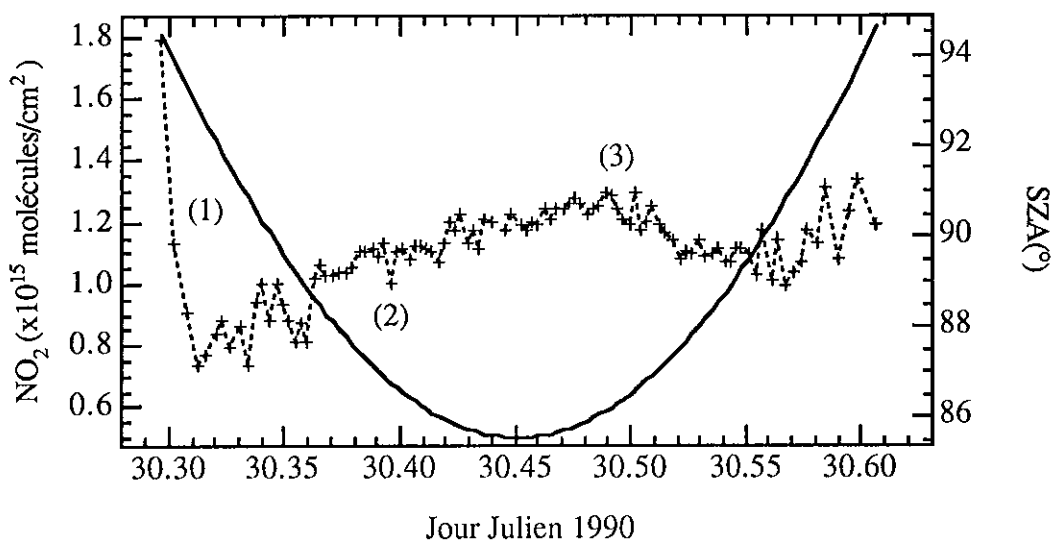


Figure 42: Mesures de la colonne verticale de  $\text{NO}_2$  effectuée par le SAOZ le 30 janvier 1990 à Kiruna. Une variation diurne est observée.

## 7) CONCLUSION

Nous avons construit un modèle de transfert radiatif en diffusion simple, puis démontré sa validité en comparant les calculs des facteurs d'amplification de l'ozone et de  $\text{NO}_2$  avec les observations effectuées par le SAOZ durant la campagne CHEOPS III à Kiruna en hiver 1990. Nous avons montré que le SAOZ mesure l'ozone dans le visible au crépuscule entre  $87^\circ$  et  $91^\circ$  SZA avec une précision de 5% et que l'incertitude totale est de 8% en incluant l'incertitude de 3% sur les sections efficaces. Nous avons montré que l'incertitude du calcul du facteur d'amplification de l'ozone à 510 nm au crépuscule dépend principalement de la distribution verticale de sa concentration et relativement moins de la réfraction et de la diffusion multiple. Un modèle de transfert radiatif simple est donc suffisant pour interpréter les observations spectroscopiques du ciel au zénith durant le crépuscule.

L'observation crépusculaire du ciel au zénith est un indicateur des propriétés optiques de l'atmosphère à l'altitude de la couche moyenne de diffusion, c'est à dire dans la stratosphère. Le modèle de transfert radiatif permet d'interpréter les observations: nous l'avons démontré pour l'ozone et  $\text{NO}_2$ . Nous disposons donc maintenant d'un outil fiable pour interpréter les mesures des nuages et des poussières dans la stratosphère terrestre et pour simuler les observations de l'atmosphère de Mars.

## **2ème PARTIE**

### **LES APPLICATIONS**

Nous disposons maintenant des deux outils permettant l'étude des nuages et des poussières depuis le sol sur Terre: l'instrument SAOZ et un modèle de transfert radiatif. Nous allons les utiliser pour successivement mettre au point une méthode de détection des nuages et des poussières dans la stratosphère, étudier leur influence sur la mesure de l'ozone par le SAOZ, puis définir un capteur optique destiné à l'étude des nuages et des poussières dans l'atmosphère de Mars depuis le sol même de la planète.



## **CHAPITRE III**

### **LA DETECTION DES NUAGES STRATOSPHERIQUES POLAIRES**

Les observations crépusculaires du ciel au zénith effectuées par le SAOZ durant la campagne CHEOPS III en hiver 1990 à Kiruna montrent suivant les cas des rougissemments ou des bleuissements très intenses des spectres par rapport à ceux observés durant toute l'année. Un indice de couleur, défini par le rapport entre les flux à 550 et 350 nm permet de quantifier les variations de couleur observées. Pour interpréter les observations, nous avons introduit des nuages stratosphériques polaires dans le modèle de transfert radiatif présenté au chapitre III. La comparaison des résultats du modèle avec les autres observations de nuages stratosphériques polaires permet de valider la méthode de détection systématique depuis le sol par tout temps.



## 1) LES OBSERVATIONS

Un spectromètre SAOZ était installé à Kiruna (Suède, 67° N) durant la campagne CHEOPS III (CHEmistry of Ozone in the Polar Stratosphere) du 10 janvier au 9 mars 1990 et à Sodankyla (Finlande, 67°N) à partir du 11 mars 1990. Les spectres ont été obtenus avec une résolution de 1 nm entre 290 et 600 nm, une observation toutes les 300 secondes jusqu'à 94-95° SZA. Après analyse spectroscopique, le SAOZ restitue les spectres corrigés des absorptions par O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O.

La figure 43 présente trois types de spectres observés par le SAOZ à 92.5-93° SZA. Le spectre obtenu le 9 février est typique de ceux observés tout au long de l'année, avec un maximum d'intensité situé vers 460 nm. Les deux autres sont totalement différents dans le visible, alors qu'ils sont identiques dans l'UV. Le 24 janvier, le maximum est deux fois plus intense (4 coups/s au lieu de 2) et décalé vers 550 nm, ce que nous identifions comme étant un rougissement du spectre. Le 6 février, le flux est diminué d'un facteur 2 aux longueurs d'onde supérieures à 400 nm (bleuissement du spectre).

Pour caractériser les observations précédentes, un indice de couleur (CI pour Color Index) a été défini par le rapport des flux à 550 et 350 nm, corrigés des absorptions atmosphériques pour que l'indice de couleur ne dépende que des interactions Rayleigh et Mie. Ces longueurs d'ondes ont été choisies en relation avec les moyens d'observation du SAOZ (domaine de longueur d'onde limité entre 300 et 600 nm) et à côté des principales raies de Fraunhofer et des absorptions troposphériques de O<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O, afin de minimiser l'incertitude sur la détermination des flux.

Les interactions de type Mie sont inversement proportionnelles à la longueur d'onde, il convient donc de choisir des longueurs d'onde le plus éloignées possible afin d'amplifier la dynamique du CI.

Les grandes raies de Fraunhofer ont été évitées car après correction de l'effet Ring, il y reste un bruit de 1%, au lieu de 0.3% en moyenne sur tout le domaine observé.

La longueur d'onde 350 nm est située entre les absorptions importantes par l'ozone (les bandes de Huygens,  $\lambda < 330$  nm) et les bandes d'absorption de O<sub>4</sub> (360 et 380 nm). La longueur d'onde 550 nm est située à l'écart des grandes bandes d'absorption de la vapeur d'eau (580-610 nm) et de O<sub>4</sub> (560-580 nm). Après correction des absorptions, il reste à 350 et 550 nm, un bruit dans le résidu des spectres qui ne dépasse pas 0.3% du signal, alors qu'en cas de forte diffusion multiple dans les basses couches (neige ou brouillard), O<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O absorbent jusqu'à 50% du rayonnement et le bruit dans le résidu atteint 1%.

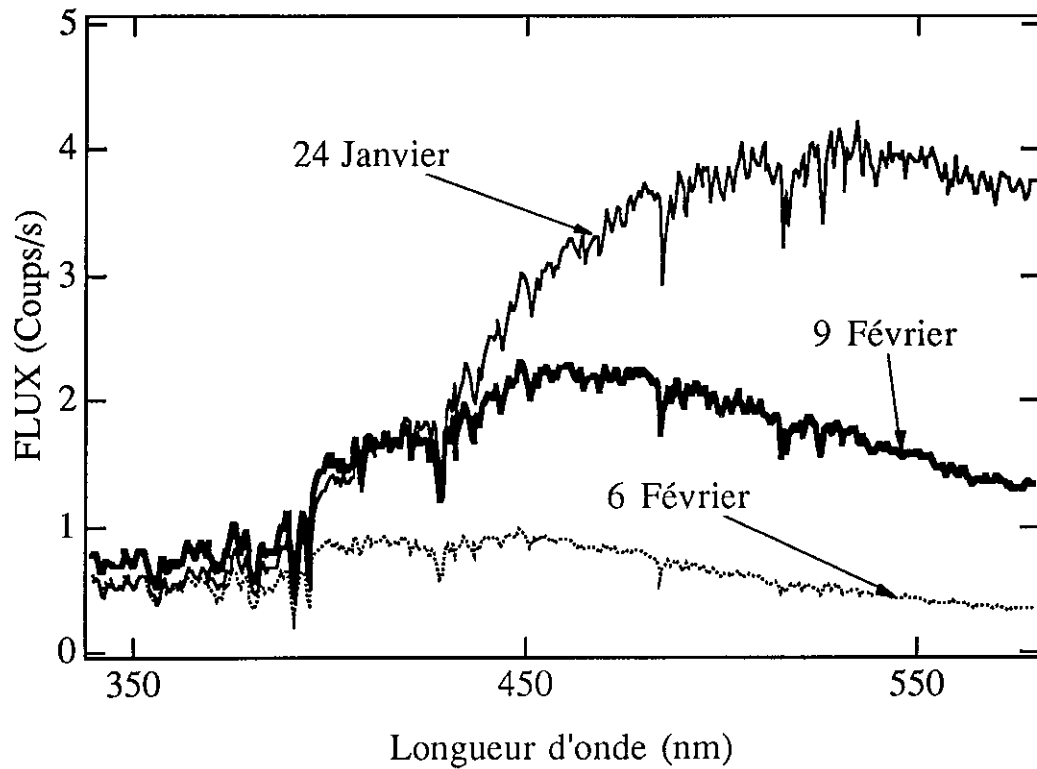


Figure 43: Les spectres observés par le SAOZ à 92.5-93° SZA. Tout au long de l'année, les spectres sont semblables à celui du 9 février avec un maximum vers 460 nm. Celui du 24 janvier est amplifié vers 550 nm, celui du 6 février est diminué dès 400 nm.

La figure 44 (en haut) présente l'indice de couleur observé par le SAOZ entre le 10 janvier et le 9 mars 1990 à Kiruna en fonction de  $\chi$  (100 crépuscules). A  $90^\circ$  SZA, l'indice varie entre 1.3 et 4 d'un crépuscule à l'autre, ce qui est observé régulièrement, par exemple durant toute une année d'observation à Sodankyla (Finlande,  $67^\circ$  N) en 1990. Les différences de couverture nuageuse dans la troposphère d'un crépuscule à l'autre sont à l'origine de ces variations. Mais ce qui nous intéresse, c'est la contribution stratosphérique dans l'indice de couleur. A  $90^\circ$  SZA, l'altitude de la couche moyenne de diffusion est supérieure à 8 km. Les rayons lumineux à 550 et 350 nm traversent une éventuelle couverture nuageuse dans la troposphère verticalement et de la même manière entre  $90$  et  $95^\circ$  SZA. Le trajet optique, y compris les contributions dues à la diffusion multiple sont identiques dans cet intervalle. La normalisation de l'indice de couleur à  $90^\circ$  SZA pour chaque crépuscule permet de neutraliser la contribution éventuelle des nuages troposphériques pour ne laisser que les contributions stratosphériques. L'indice de couleur normalisé à 1 à  $90^\circ$  SZA est représenté sur la figure du bas. Les rougissemments et les bleuissements de l'indice de couleur n'ont plus une origine troposphérique.

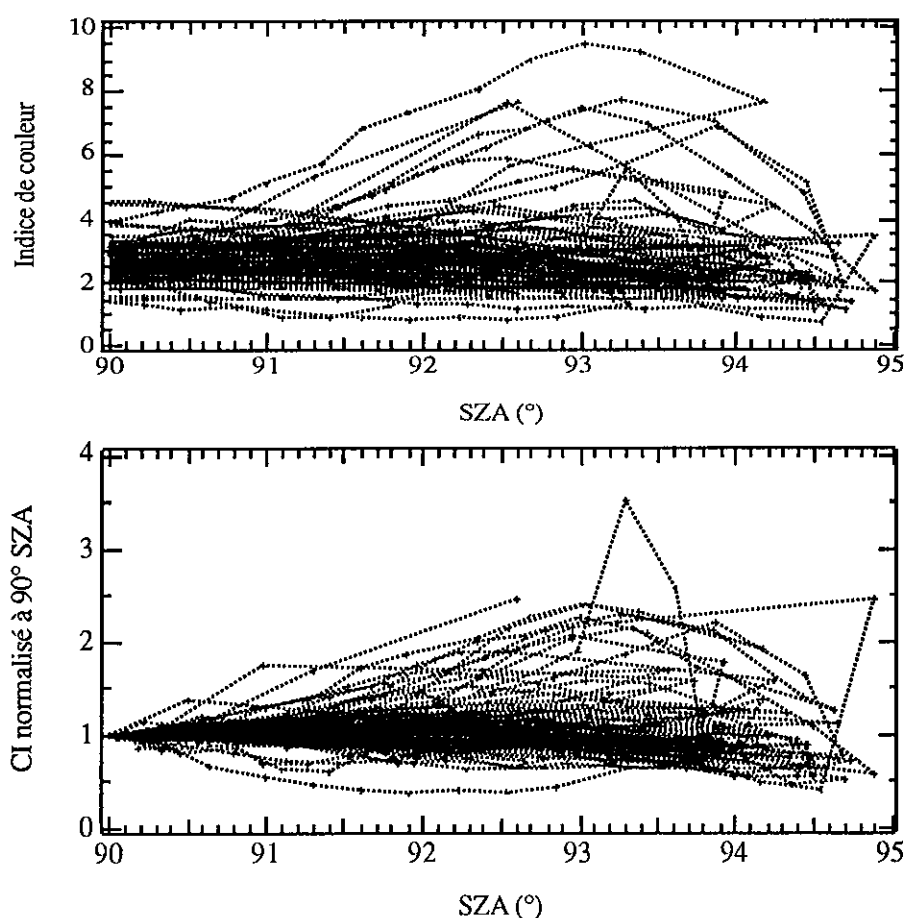
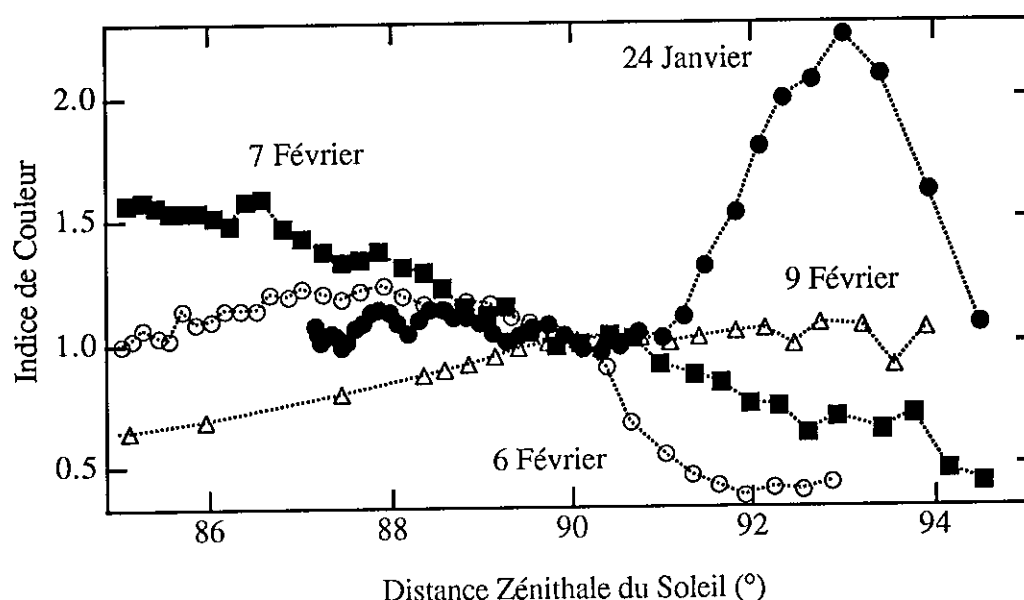


Figure 44: Observations de l'indice de couleur (100 crépuscules) à Kiruna en hiver 1990 (figure du haut), normalisé à 1 à  $90^\circ$  SZA (figure du bas).

La figure 45 montre quatre exemples de variations crépusculaires du CI normalisé observés à Kiruna durant la campagne CHEOPS III. En général, cet indice est quasiment constant entre 90 et 94° SZA, comme par exemple le 9 février. Pendant l'hiver polaire, lorsque la température de la stratosphère est très basse, donc avant le 8 février pour la campagne de 1990, nous observons des évolutions de l'indice de couleur durant le crépuscule très différentes: (i) un rougissement très intense entre 92 et 94° SZA, d'un facteur allant jusqu'à 3.5 tel que celui du 24 janvier par exemple qui atteint son maximum vers 93° SZA avec un CI de 2.2 et une évolution régulière avant et après le maximum, (ii) un bleuissement très brutal vers 90° SZA d'un facteur 2.5 le 6 février ou (iii) un bleuissement plus progressif comme celui du 7 février.



**Figure 45:** Variation de l'indice de couleur normalisé à 1 à 90° SZA en fonction de la distance zénithale du Soleil. Le 9 février est un exemple de ce que l'on peut observer régulièrement durant toute l'année, avec un maximum vers 92° SZA et de faibles variations crépusculaires. Pendant la campagne CHEOPS III, nous avons observé à plusieurs occasions: (i) un rougissement à 93° SZA comme celui du 24 janvier, (ii) un bleuissement progressif comme celui du 7 février, (iii) et un bleuissement dès 90° comme celui du 6.

## 2) INTERPRETATION DES OBSERVATIONS

L'interprétation des observations consiste à reproduire à l'aide du modèle de transfert radiatif, les bleuissements et les rougissemments. Les observations du ciel au zénith durant le crépuscule sont sensibles aux propriétés diffusantes et atténuatrices de la stratosphère. Seuls des nuages stratosphériques (ou des aérosols d'origine volcanique, comme ceux injectés dans la stratosphère par le volcan Philippin Pinatubo en 1991, qui seront traités au chapitre suivant) sont capables de générer les indices de couleur observés. Nous allons donc introduire des nuages stratosphériques polaires dans le modèle, afin d'étudier leur influence sur l'indice de couleur.

### Propriétés des nuages stratosphériques polaires

Les nuages stratosphériques polaires qui se forment en hiver lorsque la température est particulièrement froide, sont classés en deux groupes aux caractéristiques distinctes (Toon et al., 1986; Crutzen and Arnold, 1986; Kent et al., 1986; Poole and McCormick, 1988). Les PSC de type I sont des nappes de brumes qui apparaissent lorsque la température stratosphérique est inférieure à  $-78^{\circ}\text{C}$ . Ils seraient constitués d'une association d'une molécule d'acide nitrique avec trois molécules d'eau (d'où le nom de NAT pour Nitric Acid Trihydrate). Les PSC de types II sont constitués de particules de glace d'eau (d'où le nom de ICE). Ils apparaissent à basses températures (en-dessous de  $-88^{\circ}\text{C}$ ) dans la stratosphère polaire. Les observations satellitaires par occultation solaire, par définition uniquement au terminateur et les mesures depuis le sol par lidar au Pôle Sud montrent que ces nuages sont présents dès le mois de mai en Antarctique entre 15 et 22 km et qu'ils disparaissent au printemps, au mois de novembre, lors de l'échauffement stratosphérique final. Dans l'hémisphère Nord, ces nuages sont moins fréquents car la température y est en moyenne de 8 à  $10^{\circ}\text{C}$  plus élevée, à cause de l'instabilité du vortex (ou dépression) polaire et de la date du réchauffement final qui se produit en Janvier ou Février, soit un à deux mois avant l'équinoxe.

Les particules des nuages sont formées par condensation lors du refroidissement de l'air. Il existe actuellement deux scénarii de refroidissement (Toon and Turco, 1991): lent ou rapide. Le premier scénario est fondé sur les observations en Antarctique. Dans le vortex très stable du Pôle Sud, la température baisse régulièrement durant l'hiver. Il se forme d'abord des PSC de type I autour des petites gouttelettes liquides d'acide sulfurique ( $0.1\text{ }\mu\text{m}$  de diamètre, présentes dans toute l'atmosphère de la Terre). Lorsque la température descend en dessous de  $-88^{\circ}\text{C}$ , la vapeur d'eau condense lentement autour

des particules qui grossissent ( $>10\ \mu\text{m}$ ) et forment des PSC de type II. Ces particules sont trop lourdes pour rester dans la stratosphère, elles tombent. L'air est déshydraté et dénitrié, ce que l'on observe. Le second scénario, de refroidissement rapide, aboutit à des particules petites ( $1\ \mu\text{m}$ ). De forts vents dans la troposphère génèrent des ondes de gravité au dessus d'une perturbation ou des ondes orographiques au dessus d'une chaîne de montagne. La température diminue rapidement par détente adiabatique et des nuages se forment par condensation de la vapeur d'eau. Nous avons observé ces nuages pendant la campagne CHEOPS III (figure 1, chapitre I). Ils sont lenticulaires et fixes dans la stratosphère.

Les nuages stratosphériques sont introduits dans le modèle par leurs propriétés diffusantes, atténuatrices et géométriques, c'est à dire l'épaisseur optique, la dépendance en longueur d'onde et la fonction de phase de la diffusion par les particules, l'altitude et l'épaisseur géométrique. Les trajets optiques, les fonctions de poids, les facteurs d'amplification et l'indice de couleur sont calculés en fonction de ces paramètres.

La table 6 indique les caractéristiques des nuages introduites dans le modèle (McCormick and Trepte, 1987; Rosen et al., 1989; Hofmann et al., 1989; Kinne and Toon, 1990; Osborn et al., 1990; Herman et al., 1991). La première ligne indique le type de PSC, la seconde sa constitution, la troisième le coefficient de dépendance en longueur d'onde  $\alpha$ . Les lignes suivantes donnent l'altitude  $Z$  à laquelle ils apparaissent généralement et leur épaisseur géométrique  $\Delta Z$ . La sixième ligne indique leur épaisseur optique verticale totale maximum  $\tau$  à  $1\ \mu\text{m}$ . La septième ligne montre le rapport entre leur coefficient d'atténuation (par km) et de diffusion à  $90^\circ$  (par unité d'angle solide). Souvent utilisé dans les problèmes de diffusion, ce coefficient rend compte de la fonction de phase à  $90^\circ$ . Les grandes valeurs ( $>80$ ) correspondent à des fonctions de phase faibles à  $90^\circ$ , donc d'une diffusion anisotrope.

Les PSC de type I sont divisés en deux groupes: Ia et Ib. Les premiers sont issus d'un refroidissement lent (durée: une semaine à un mois environ) de la stratosphère, les second d'un refroidissement plus rapide (24 heures). Les cristaux de PSC de type Ib sont donc généralement de plus petite taille que les PSC de type Ia, car les particules n'ont pas eu le temps de grossir suffisamment. Le coefficient de dépendance en longueur d'onde  $\alpha$ , qui augmente lorsque la taille de la particule diminue, est donc plus proche de 0 pour les PSC de type Ia. Le refroidissement lent est toujours très étendu en altitude, les PSC de type Ia sont donc généralement épais (3 à 5 km), alors que ceux de type Ib peuvent être parfois plus fins, parfois plus épais (1 à 9 km). L'épaisseur optique des PSC de type Ib est généralement plus grande que celle des PSC de type Ia. Le rapport  $k / \beta$  montre que les PSC de type Ib ont une diffusion plus isotrope que les Ia.

PSC Type	Ia	Ib	Ib Epais	II	II Epais	Cirrus
Composition	NAT	NAT	NAT	ICE	ICE	ICE
$\alpha$	0.4	2,3	2	0.5	0.5	0
Altitude (km)	16-28	16-28	16-24	16-24	16-22	6-8
Epaisseur (km)	3,5	1,3,5	7,9	1,3,5	7,9	1
$\tau$ à 1 $\mu\text{m}$	0.02	0.08	0.1-0.2	0.08	0.1-0.2	0.5
$k_a / \beta_r$	200	40-80	40	40	40	40

Table 6: Caractéristiques des PSC introduits dans le modèle.

Les PSC de type II, composés de glace d'eau sont plus gros que les PSC de type Ib. Ils ont un coefficient de dépendance en longueur d'onde faible. Ils sont plus épais géométriquement et peuvent se trouver très bas dans la stratosphère, jusqu'à 10 km d'altitude. Ils ont une épaisseur optique grande qui atteint quelquefois 0.2. Leur rapport  $k/\beta$  montre que leur fonction de phase est beaucoup moins anisotrope que celle des PSC de type Ia.

Les Cirrus, que nous introduirons dans le calcul pour référence, sont formés de grosses ( $>10 \mu\text{m}$ ) particules de glace et ont donc un coefficient  $\alpha$  égal à 0. En régions polaires, on les trouve à des altitudes comprises entre 4 et 8 km. Nous avons introduit dans le modèle des Cirrus d'épaisseur optique verticale inférieure ou égale à 0.5, car au delà, la diffusion multiple doit être introduite dans les calculs. Leur rapport  $k/\beta$  est semblable à celui des aérosols de fond.

### Résultats du modèle

Lorsqu'il n'y a pas de nuage dans la stratosphère, l'indice de couleur qui vaut 1 à  $90^\circ$  SZA décroît lentement entre  $90^\circ$  et  $93^\circ$  où il atteint 0.8, puis reste quasiment constant jusqu'à  $95^\circ$ .

En présence de PSC de types Ia, l'indice de couleur est semblable à 10% près. L'épaisseur optique et le coefficient de diffusion à  $90^\circ$  des PSC de type Ia sont trop faibles pour affecter le rayonnement.

La figure 46 a) montre les résultats du modèle pour des PSC de type Ib, d'épaisseur 5 km, situés de 18 à 28 km. Un rougissement est généré vers  $93^\circ$  SZA pour les nuages élevés. Plus le nuage est élevé, plus le rougissement est important (jusqu'à 2) et situé à grandes distances zénithales. Pour des nuages bas en dessous de 22 km, un bleuissement progressif est observé qui peut atteindre 0.7 à  $94^\circ$  SZA.

Les PSC de type II faits de cristaux de glace, d'épaisseur 1 km et d'épaisseur optique 0.08 montrent (figure b)) un rougissement comme précédemment, mais d'une amplitude beaucoup plus grande (jusqu'à 4). Les nuages bas et fins en dessous de 20 km ont une influence très faible sur l'indice de couleur.

Les figures c) et d) montrent l'évolution de l'indice de couleur pour des nuages géométriquement épais ( $\Delta Z = 9$  km,  $\tau = 0.12$ ), de types Ib et II. Dans tous les cas on obtient des bleuissements. Ceux générés par les nuages de glace montrent une rupture nette vers  $89 - 90^\circ$  SZA, tandis que les nuages NAT entraînent un bleuissement progressif entre  $90$  et  $95^\circ$  SZA.

Nous avons pu reproduire les rougissements ainsi que les bleuissements observés aux crépuscules pendant la campagne CHEOPS III. Ainsi, le rougissement de 2.3 à  $93^\circ$  SZA observé le 24 janvier 1990 est obtenu par un nuage de type II de 1 à 3 km d'épaisseur ( $\tau = 0.08$ ), ou par un nuage probablement moins réaliste de type Ib de 0.12 d'épaisseur optique, d'épaisseur géométrique de 1 km situé vers 25 km d'altitude. Le bleuissement observé le 7 février nécessite un nuage épais de type Ib ou II d'épaisseur optique 0.12 situé à 20 km. Le bleuissement observé le 6 février correspond à un PSC épais (7-9 km,  $\tau = 0.12$ ) et bas (18-20 km), probablement de type II car la rupture du CI est nette dès  $91^\circ$  SZA.

En présence de Cirrus, l'indice de couleur est semblable à 10% près à celui calculé en l'absence de nuage. Les Cirrus sont situés vers 4-8 km en régions polaires en hiver, c'est à dire en dessous de la couche moyenne de diffusion des rayonnement à 550 et 350 nm qui traversent ces nuages suivant la verticale durant le crépuscule.



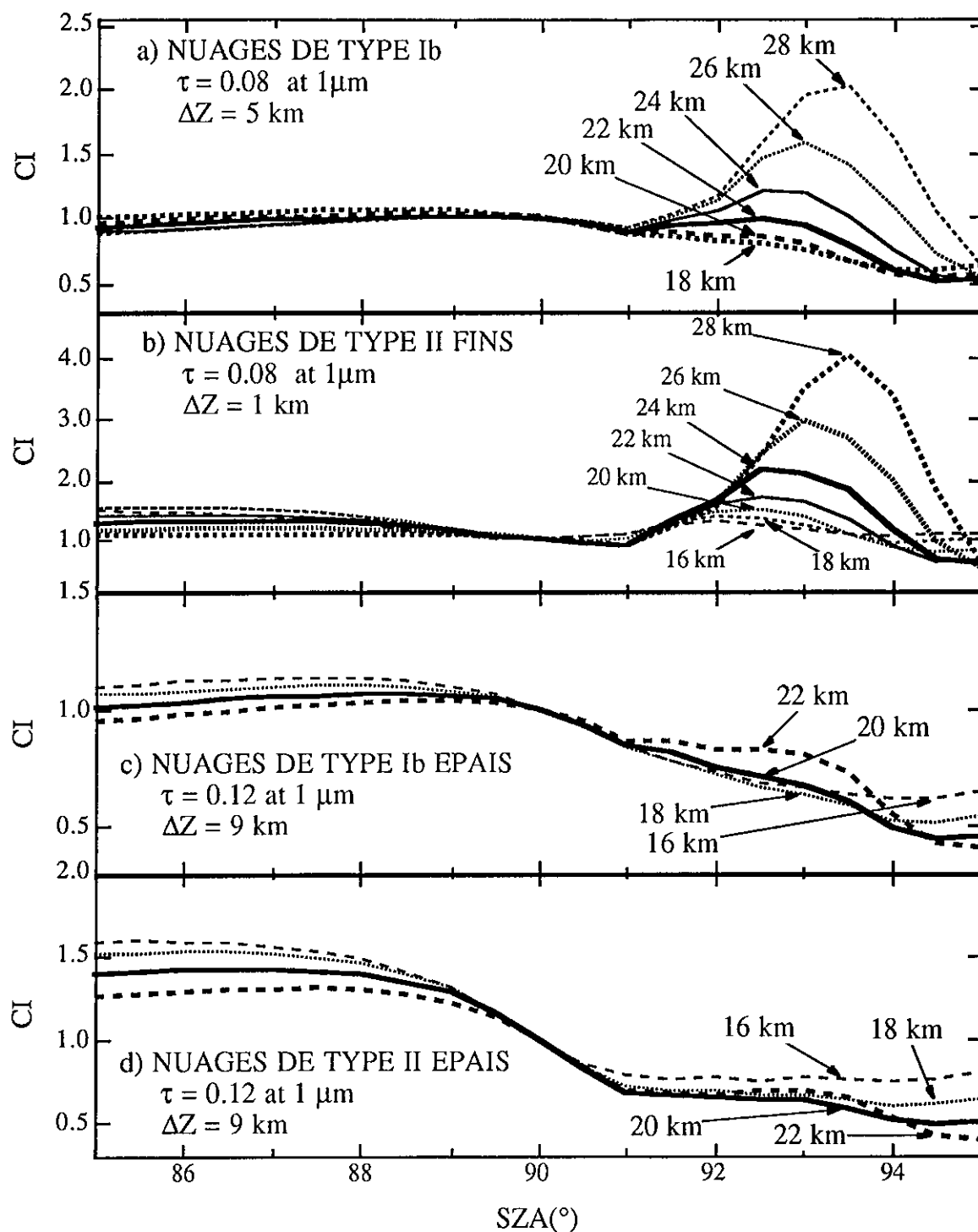


Figure 46: Les indices de couleur calculés par le modèle en présence de nuages stratosphériques polaires.

La figure 47 donne une explication schématique des rougissemments et des bleuissements. Elle montre les trajets des rayons lumineux à 550 et 350 nm (figures du haut) et l'altitude du maximum de la fonction de poids à  $93^\circ$  SZA représentée sur les planches du bas pour: un ciel clair (a), un ciel avec un nuage bas et épais (b) et un ciel avec un nuage haut et fin (c). La courbure de la Terre et la distance zénithale du Soleil ont été amplifiées pour faciliter la visualisation.

Dans tous les cas, la contribution en dessous de 10 km est nulle car la troposphère est dans la nuit.

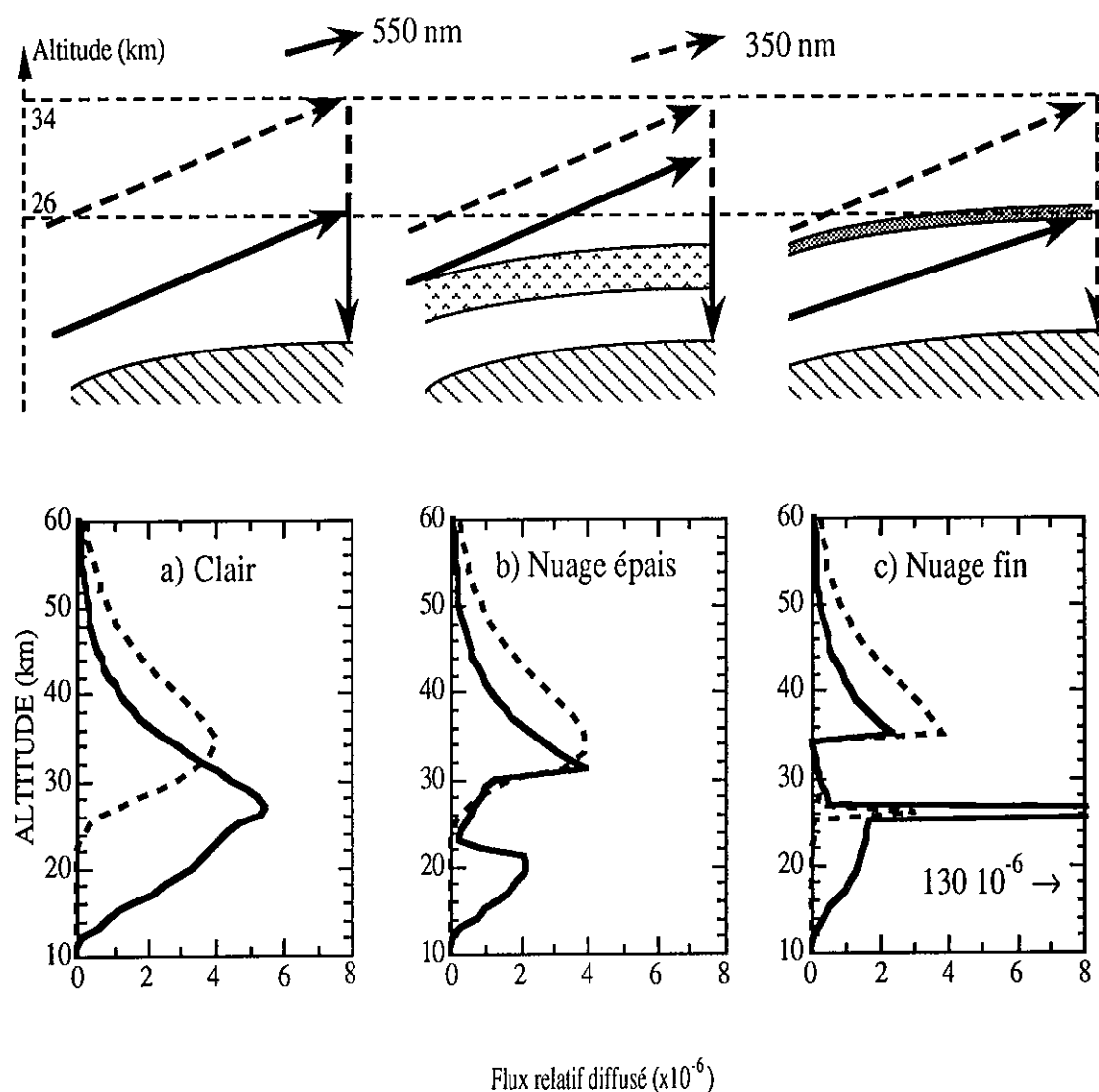
Figure a). Le ciel est clair. La contribution la plus significative ou couche moyenne de diffusion est située à 26 km d'altitude à 550 nm et à 34 km à 350 nm.

Figure b). Un nuage bas et épais a été introduit dans le modèle (PSC de type Ib,  $Z = 24$  km,  $\Delta Z = 9$  km,  $\tau = 0.12$ ). La couche moyenne de diffusion à 350 nm n'est pas affectée car elle est située 6 km au dessus du nuage. La fonction de poids du flux à 550 nm fait apparaître un trou à l'altitude où les rayons lumineux traversent le nuage au point tangent, c'est à dire entre 20 et 30 km. Le rayonnement à 550 nm est fortement atténué en traversant le nuage tangentiellement alors que celui à 350 nm n'a pas changé. Un bleuissement est observé.

Figure c). Un nuage fin et élevé est introduit dans le modèle (PSC de type II,  $Z = 26$  km,  $\Delta Z = 1$  km,  $\tau = 0.08$ ). Les rayonnements à 550 et 350 nm sont atténués par le nuage lorsqu'ils le traversent par la tranche et leurs fonctions de poids montrent un trou (donc une perte) du même ordre de grandeur situé entre 28 et 32 kilomètres. Cependant, le rayonnement qui n'est que partiellement atténué lors de la traversée du nuage, est rediffusé vers l'observateur, ce qui génère un pic de la fonction de poids. Le pic à 550 nm est 25 fois plus intense que celui à 350 nm. Un rougissemment est observé.

### Conclusion

Les nuages stratosphériques de type Ib et II peuvent produire des bleuissements et des rougissemments suivant les cas, alors que ceux de type Ia et les Cirrus ne génèrent pas de variation significative de l'indice de couleur. La variation du rayonnement à 550 nm détermine l'indice de couleur, alors que celui à 350 nm change relativement peu.



**Figure 47:** Explication schématique des rougissemments et des bleuissements à 93° SZA, a) un ciel clair, b) en présence d'un PSC bas et épais, c) en présence d'un PSC haut et fin. Les figures du haut montrent les trajets effectués par les rayons lumineux qui diffusent à l'altitude de la couche moyenne de diffusion représentée par une fonction de poids (figures du bas). Un bleuissement est observé parce qu'une partie importante du flux à 550 nm est atténuée en traversant un nuage bas et épais. Le rougisement s'explique par un pic de diffusion près de 25 fois plus intense à 550 qu'à 350 nm alors que l'atténuation entre 28 et 32 km est du même ordre de grandeur.

Les bleuissements sont dus à la présence de nuages bas et épais dans le stratosphère. Le bleuissement est d'autant plus important que le nuage est optiquement et géométriquement épais et que le coefficient de dépendance en longueur d'onde est petit. Les nuages de type Ib génèrent des bleuissements d'amplitude moins grande que ceux de type II.

Les rougissemments sont générés par des nuages hauts et fins. L'amplitude du rougissemment est d'autant plus grande que le nuage est élevé, géométriquement fin, optiquement épais et que le coefficient de dépendance en longueur d'onde  $\alpha$  est petit. Les nuages de type Ib génèrent des rougissemments d'amplitude moins grande que ceux de type II.

La figure 48 résume les conditions de rougissemments et de bleuissements de l'indice de couleur en fonction de l'altitude, des épaisseurs optique et géométrique des nuages. Les flèches indiquent la direction de l'accroissement du rougissemment ou du bleuissement. Les nuages fins donnent des rougissemments pour des valeurs de l'épaisseur supérieures à 0.02 lorsqu'ils sont situés au dessus de 22 km. Les nuages bas et épais ne génèrent des bleuissements que lorsqu'ils ont une épaisseur optique supérieure à 0.05. Les bleuissements maximums sont obtenus lorsque le nuage est situé entre 18 et 20 km d'altitude. Dans le cas de nuages optiquement trop fin ou trop bas, le modèle ne montre aucune sensibilité de l'indice de couleur.

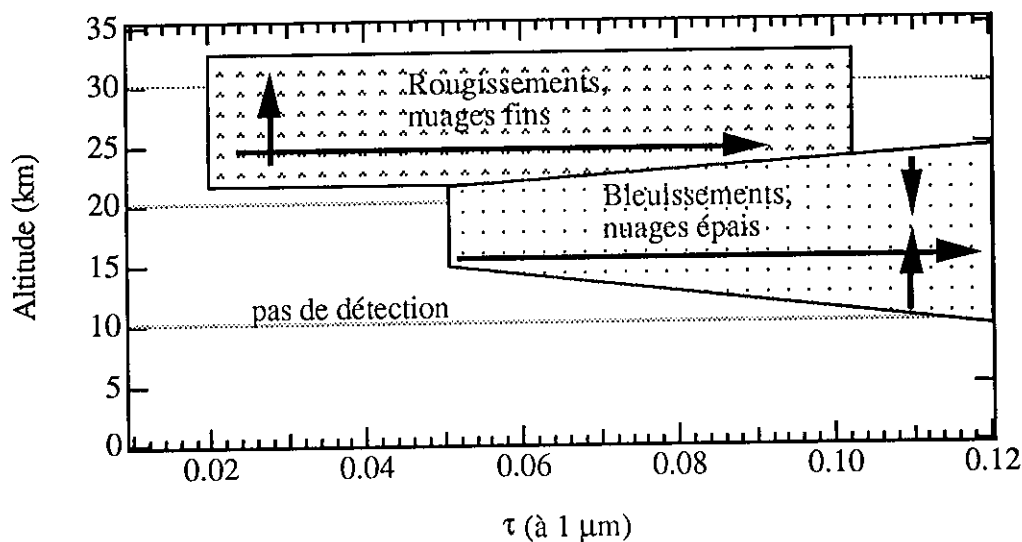


Figure 48: Résumé des conditions de rougissemment et de bleuissement de l'indice de couleur en fonction de l'épaisseur optique, de l'altitude et de l'épaisseur géométrique du nuage. Les flèches indiquent le sens croissant de l'effet.

### 3) LES PSC DURANT LA CAMPAGNE CHEOPS III

La figure 49 présente les rougissemments (b) et les bleuissements (d, présentés en ordonnée inversée de 0.8 à 0.4, les bleuissements apparaissent ainsi sous forme de pics) observés à Kiruna et Sodankyla en janvier et février 1990, ainsi que les températures à 30 hPa (environ 21.5 km) et 50 hPa (environ 18.5 km). Les températures notées NAT et ICE correspondent respectivement à celles de condensation des particules NAT ( $\text{HNO}_3 + 3\text{H}_2\text{O}$ ) et de glace d'eau (Hanson et Mauesberger, 1988), pour un rapport de mélange de la vapeur d'eau de  $5 \cdot 10^{-6}$ , ce qui était le cas (Ovarlez, 1991). Il n'y a pas d'observation les 10 et 11 janvier (installation de l'instrument), le 4 au matin et le 10 février (transport de l'instrument de Kiruna à Sodankyla).

Des rougissemments et bleuissements intenses sont fréquemment observés entre le 12 janvier et le 8 février, alors qu'au printemps et en été (non représentés sur la figure), les bleuissements observés n'ont jamais été inférieurs à 0.7 et les rougissemments, supérieurs à 1.4. Les nuages observés apparaissent donc uniquement durant l'hiver polaire.

Les rougissemments sont observés lorsque la température à 30 hPa est en dessous de celle de formation des NAT, c'est-à-dire entre le 12 janvier et le 9 février. Les plus forts rougissemments ont été observés alors que la température à 30 hPa est très proche ou inférieure à celle de la condensation de la vapeur d'eau. Ils apparaissent seulement entre le 24 janvier et le 6 février. Aucun rougissemment supérieur à 1.4 n'apparaît après le réchauffement stratosphérique mineur du 8 février. La corrélation entre les rougissemments et la température à haute altitude confirme les résultats du modèle qui montre que les rougissemments sont dus à des nuages élevés.

Les bleuissements sont observés lorsque la température à 50 hPa est en dessous de celle de formation des NAT, c'est-à-dire entre le 12 janvier et le 9 février. Les bleuissements les plus importants ont été observés le 6 et le 7 février, alors que la température stratosphérique était de  $-94^\circ\text{C}$ . Un petit bleuissement inférieur à 0.75 apparaît le 16 février, après le réchauffement stratosphérique mineur du 8 février. Il correspond à un minimum de température à 50 hPa. Les deux petits bleuissements observés plus tard à Sodankyla correspondent à des Cirrus et Cirro-stratus à haute altitude identifiés par l'Observatoire Météorologique de Sodankyla (E. Kyro, communication privée). La corrélation entre les bleuissements et la température à basse altitude confirme les résultats du modèle qui montre que les bleuissements sont dus à des nuages bas.

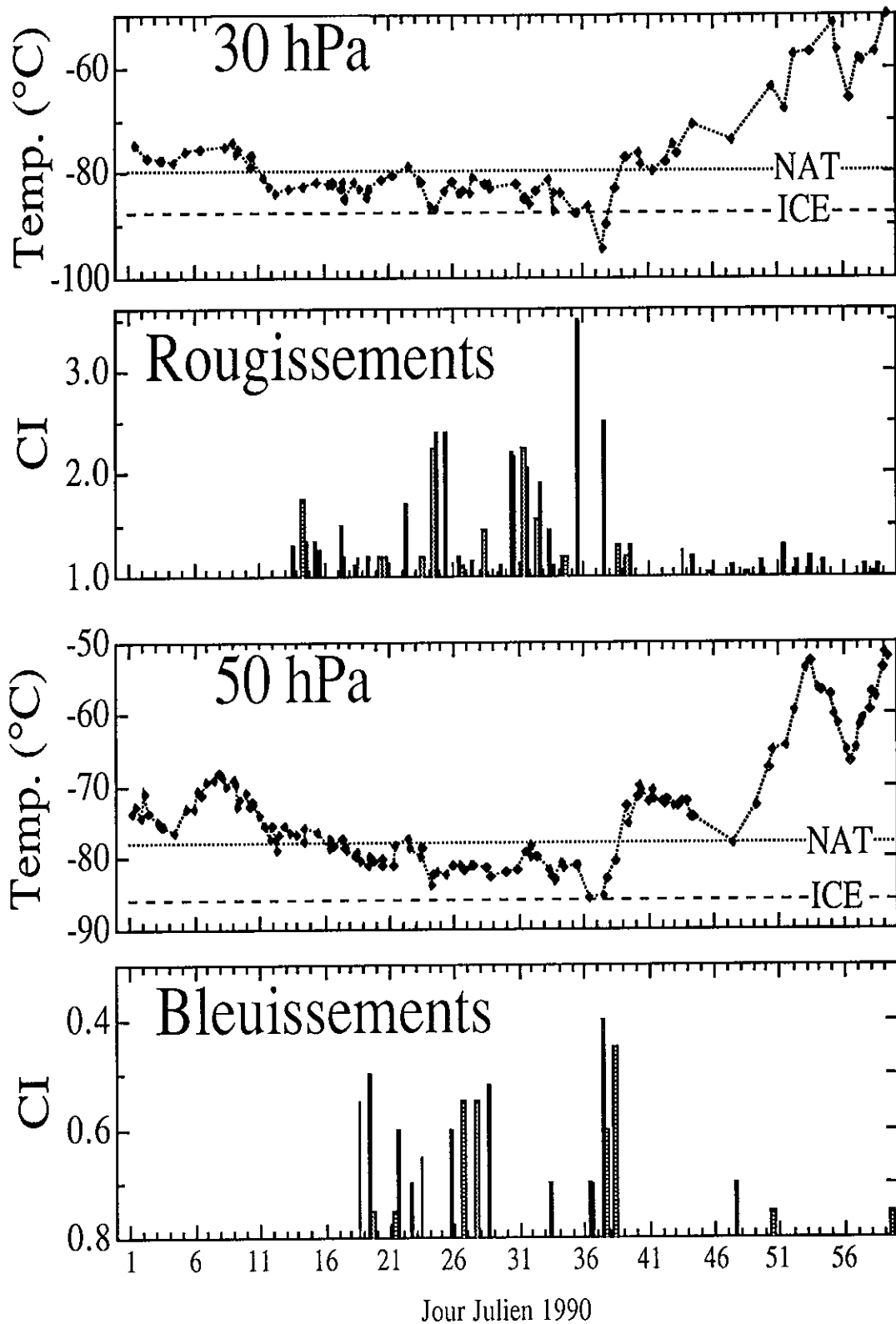


Figure 49: Les rougissements (b) et les bleuissements (d) observés pendant la campagne CHEOPS III à Kiruna, en fonction des températures à 30 (a) et 50 (c) hPa.

Les nuages stratosphériques polaires ont été observé visuellement à Kiruna entre le 10 janvier et le 8 février à quelques rares occasions de beau temps, mais jamais après le 9 février. Un ciel pourpre a été observé le 16 janvier au soir et les 4 et 6 février, matin et soir. Des nuages nacrés stationnaires ont été observés le 19 janvier au soir et les 4 et 6 février, matin et soir. Les mesures effectuées par le SAOZ sont en accord avec ces observations.

Elles le sont aussi avec les observations effectuées en ballon par un compteur d'aérosols (Hoffman et al., 1990, Hoffman and Deshler, 1990). Le 31 janvier, le compteur a détecté des PSC de type Ib composés de petites particules ( $0.2 \mu\text{m}$ ) NAT entre 20 et 24 km. Le spectromètre a observé un rougissement de 2.2, ce qui correspond à un nuage d'épaisseur optique de 0.12 et géométrique de 3 km, fait de petites particules ( $\alpha = 3$ ) et situé à 23 km. Le 6 février, le compteur d'aérosols a détecté des PSC de type Ib dans la partie inférieure et II dans la partie supérieure du nuage situé entre 18 et 24 km. Le bleuissement observé le 6 février est le plus intense de la campagne et correspond d'après le modèle, à un PSC de types II ou Ib épais (5-9 km,  $\tau = 0.12$ ) et bas (18-20 km).

Le 4 février, le radiomètre RADIBAL embarqué en ballon (Herman et al., 1991) a détecté: (i) une fine couche de particules très grosses vers 23.5-25.5 km, (ii) un nuage principal très étendu entre 19 et 24 km et (iii) un nuage plus bas situé entre 12 et 20 km. Le même jour, le SAOZ a observé le rougissement le plus intense de la campagne, de 3.5 à  $93^\circ$  SZA. D'après le modèle, cela correspond à des PSC de type II situés vers 25 km, en accord avec les observations de grosses particules à haute altitude de RADIBAL.

L'expérience TIROS Operational Sounder (TOVS) embarquée à bord du satellite HIRS2 (High Resolution Infrared Sounder), a détecté le 6 février des PSC très épais au dessus de Kiruna (Lefèvre, 1991), ce qui est en accord avec le bleuissement à 0.4 le plus intense de la campagne observé par le SAOZ.

#### 4) CONCLUSION

Nous avons montré que l'observation par le SAOZ de l'indice de couleur du ciel au zénith au crépuscule permet la détection systématique des nuages stratosphériques polaires par tout temps. Les rougissemments et les bleuissements observés durant CHEOPS III ont été interprétés à l'aide d'un modèle de transfert radiatif simple, dans lequel les propriétés diffusantes et atténuatrices des nuages ont été introduites. Les rougissemments sont générés par des nuages fins à haute altitude (20-26 km) et sont plus intenses en présence de PSC composés de cristaux de glace qu'en présence de PSC de type NAT. Les bleuissements sont générés par des nuages bas et géométriquement épais (16-20 km,  $5 < \Delta Z < 10$  km) et sont d'autant plus intenses que les nuages sont optiquement épais. Tant pour les rougissemments que pour les bleuissements, c'est la partie visible (550 nm) du rayonnement qui est soit amplifiée, soit atténuée par la présence de nuages. Durant la campagne CHEOPS III, les rougissemments, donc des nuages fins et élevés ont été observés lorsque les températures à 30 hPa (environ 21.5 km) étaient inférieures à celles de condensation des cristaux de NAT ce qui confirme la présence de nuages élevés. Les bleuissements, donc des nuages bas et épais ont été observés lorsque la température à 50 hPa (environ 18.5 km) était inférieure à celle de condensation des cristaux de NAT ce qui confirme la présence de nuages bas.

La méthode de détection mise au point permettra dans le futur, une étude statistique systématique de l'apparition des nuages stratosphériques polaires à l'aide des instruments SAOZ présents depuis 1988 en Antarctique à Dumont d'Urville et en Arctique à Kiruna et Sodankyla.





## CHAPITRE IV

### L'INFLUENCE DES NUAGES ET DES AEROSOLS STRATOSPHERIQUES SUR LA MESURE DE L'OZONE

Si des nuages stratosphériques polaires modifient l'indice de couleur, ils peuvent aussi modifier les facteurs d'amplification des constituants. Lorsqu'il y a des nuages ou des poussières dans la stratosphère, l'ozone mesuré par spectrométrie depuis le sol ou l'espace semble relativement faible par rapport à la quantité mesurée par des sondes. Un SAOZ a observé le 6 février 1990 durant la campagne CHEOPS III à Kiruna, simultanément des nuages stratosphériques polaires et une valeur de l'ozone 50% inférieure à celle mesurée par des sondes. Dès septembre 1991 et encore aujourd'hui, un SAOZ installé à Sodankyla (Finlande) a observé systématiquement des bleuissements de l'indice de couleur (donc présence de diffuseurs supplémentaires bas et épais dans la stratosphère) et des valeurs de l'ozone 20% inférieures à celles mesurées par des sondes, alors qu'il existe dans la stratosphère, des particules issues de l'éruption en 1991 du volcan philippin Pinatubo.

Notre objectif est d'étudier l'influence des nuages ou des aérosols d'origines volcaniques dans la stratosphère sur la mesure de l'ozone depuis le sol par observation du ciel au zénith.

## 1) INFLUENCE DES NUAGES STRATOSPHERIQUES POLAIRES SUR LA MESURE DE L'OZONE

### Introduction

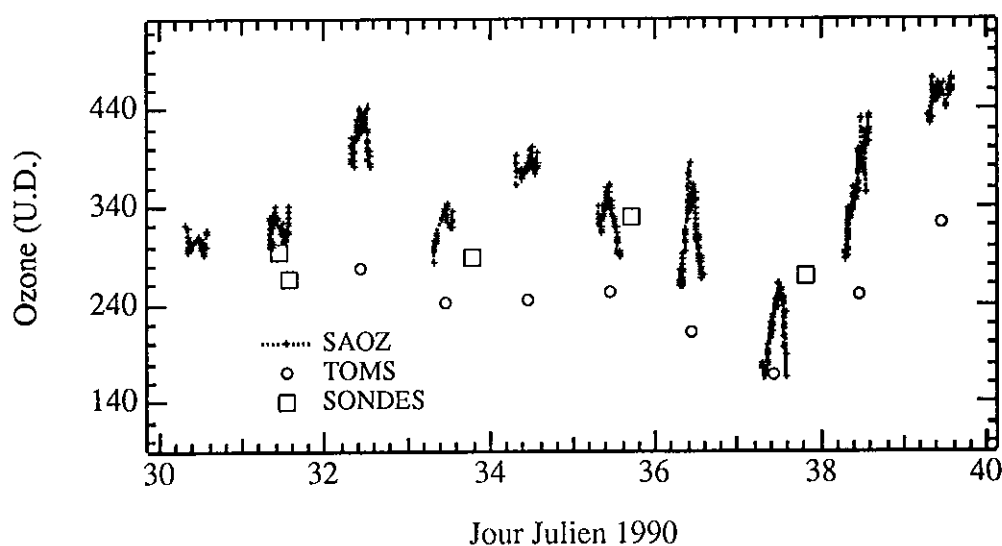
Des mini-trous d'ozone, soit une diminution de 20 à 40% de la colonne verticale en quelques heures, sur une superficie de quelques dizaines de million de km<sup>2</sup>, d'une durée de vie de 2 à 3 jours, ont été fréquemment observés depuis le sol ou l'orbite à hautes latitudes en Antarctique (Krueger, 1989, McKenna et al., 1989) et en Arctique en automne et en hiver (Pommereau and Goutail, 1988a, Krueger, 1989, Larsen and Henriksen, 1990). Les mini-trous d'ozone semblent accompagnés de nuages stratosphériques particulièrement denses associés à des perturbations troposphériques (onde de gravité) parfois amplifiées à l'approche d'une chaîne de montagne (onde orographique). L'air rapidement soulevé subit un refroidissement adiabatique susceptible de former les PSC observés simultanément. Le même soulèvement à rapport de mélange constant provoque une réduction de la concentration et donc de la colonne d'ozone qui peut atteindre 10 à 15%. Il reste donc à expliquer une perte d'environ 20 à 25%, soit par un mécanisme inconnu de destruction rapide (quelques heures) en présence de PSC, soit par un biais dans les observations. Les mesures, quelles soient effectuées depuis le sol (SAOZ) ou l'orbite (TOMS -Total Ozone Mapping Spectrometer), par observation du rayonnement diffusé, dépendent des propriétés optiques de l'atmosphère. Les mini-trous observés sont donc peut-être en partie des biais dus à la présence d'un diffuseur supplémentaire dans la stratosphère. Notre objectif est d'évaluer l'influence des PSC dans la mesure de l'ozone depuis le sol, afin de déterminer l'amplitude réelle des mini-trous observés. Nous disposons pour cela des observations effectuées par le SAOZ à Kiruna en hiver 1990 durant la campagne CHEOPS III (un mini-trou de 175 UD mesuré le 6 février) et du modèle de transfert radiatif dans lequel nous pouvons introduire des PSC.

### Eléments d'observations

L'ozone observé dans le visible (bandes de Chappuis) à 510 nm par le SAOZ entre le 30 janvier et le 9 février 1990 à Kiruna, à raison d'une observation toutes les 300 secondes jusqu'à 91° SZA est représenté sur la figure 50. Les mesures obtenues par sondage et par TOMS ont été ajoutées pour comparaison. Le 6 février au matin, une densité de colonne verticale à 90° SZA de 175 UD était enregistrée, ce qui était un minimum encore jamais atteint dans l'hémisphère Nord. Le soir, la valeur avait augmentée à 195 UD. Le même jour, TOMS mesurait au dessus de Kiruna à 10 h TU, 165 UD, soit une valeur en accord avec les observations du SAOZ. Un sondage effectué

en ballon le soir du 6 février et à l'Est de Kiruna, indique 285 UD (Hoffman and Deshler, 1990).

Des PCS ont été observés le même jour par le SAOZ. Nous avons vu au chapitre précédant, que le bleuissement de l'indice de couleur le matin du 6 février 1990 ( $CI=0.4$ ) était généré par des nuages stratosphériques polaires de type II bas et épais ( $Z = 18-20$  km,  $\tau = 0.12$  et  $\Delta Z = 7$  km). Le soir, le bleuissement ( $CI=0.4$  à  $91^\circ$  SZA) suivi d'un rougisement de  $2.5$  vers  $93^\circ$  était généré par un PSC de type II, moins épais géométriquement et optiquement que celui du matin ( $\tau = 0.08$  et  $\Delta Z = 5$  km) et situé à 20 km. Ce jour-là correspond aux nuages les plus denses jamais observés durant la campagne. L'instrument TOVS / HIRS2, à bord du satellite NOAA est destiné à la mesure de la colonne verticale d'ozone au nadir dans l'infrarouge. Mais des nuages épais dans la stratosphère biaisent les observations, qui sont alors interprétées afin de détecter les PSC (Lefèvre, 1991). Le 6 février 1990 vers 8h GMT, les observations effectuées par TOVS suggèrent la présence d'un PSC très épais sur une grande partie de la Scandinavie et notamment au sud de Kiruna (Lefèvre et al., 1991). Vers 19h GMT, le nuage est encore présent, mais sa surface a notablement diminuée et il ne couvre plus qu'une bande étroite au centre de la péninsule, au sud-ouest de Kiruna.



**Figure 50:** Les mesures de l'ozone effectuées par le SAOZ du 30 janvier au 9 février à Kiruna. Les valeurs obtenues par sondages et par TOMS ont été rajoutées pour comparaison.

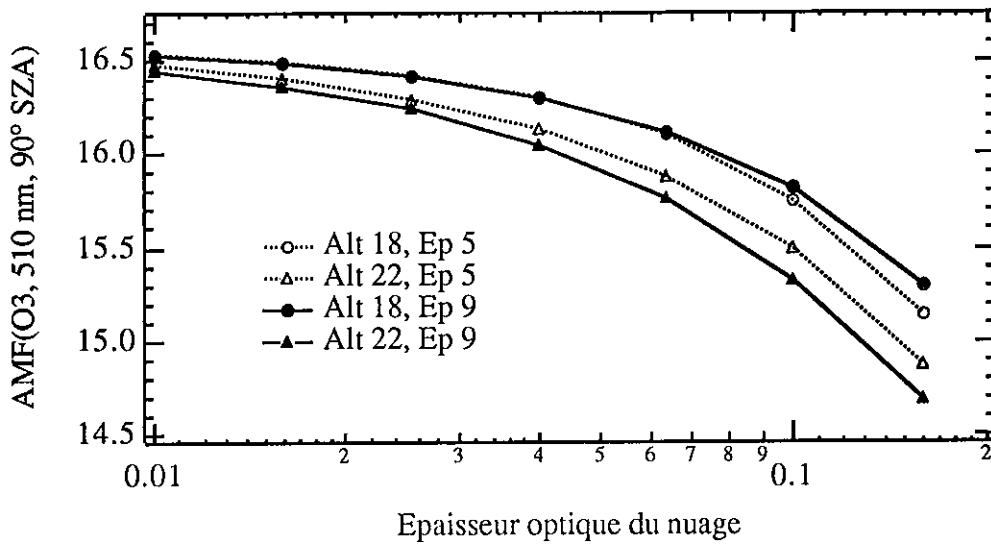
### Interprétation

Nous avons introduit dans le modèle de transfert radiatif le PSC de type II à 20 km d'altitude, dont les propriétés ont été mesurées d'après le bleuissement (0.4) observé par le SAOZ le 6 février au matin, soit une épaisseur optique verticale totale de 0.12 à 1  $\mu\text{m}$  et une épaisseur géométrique de 7 km. Le calcul montre que le facteur d'amplification de l'ozone à 90° SZA et 510 nm, qui valait 16.6 (valeur sans PSC) vaut maintenant 11.4. L'ozone total corrigé devient 255 UD. Le soir, le facteur d'amplification de l'ozone est, d'après le modèle ( $\Delta Z = 5$  km,  $Z=20$  km,  $\tau = 0.08$ ), égal à 13. La mesure corrigée vaut 250 UD.

La colonne d'ozone obtenue par le sondage est encore 35 UD supérieure à celle du SAOZ. Cependant, le SAOZ observe le rayonnement solaire qui a traversé l'atmosphère au sud de Kiruna, au coucher et au lever du soleil. Les sondes d'ozone embarquées en ballon se dirigent vers l'est et la couche d'ozone est atteinte 1h environ après le décollage, soit à 200 km de Kiruna. D'après les cartes TOVS, le nuage stratosphérique polaire était situé au sud de Kiruna. D'après les cartes TOMS, le minimum d'ozone était lui aussi situé au sud de Kiruna (Lefèvre, 1991). Le SAOZ et les sondes ne mesurent donc pas l'ozone au même endroit, ce qui peut expliquer les différences observées.

Un mini-trou d'ozone d'environ 50 UD, par rapport aux valeurs enregistrées les jours précédents, est donc bien apparu au dessus de Kiruna le 6 février 1990. Ce mini-trou peut s'expliquer par le soulèvement de l'air et correspond alors à une diminution d'environ 15% de la colonne verticale.

Durant la campagne CHEOPS III, de nombreux PSC de type Ib ont été observés sans détection de mini-trou d'ozone. Les nuages étaient alors moins épais que ceux du 6 février. Grâce au modèle de transfert radiatif, nous sommes capable de mesurer les caractéristiques géométriques et optiques des PSC observés, puis d'évaluer leur influence sur les facteurs d'amplification. La figure 51 présente le facteur d'amplification de l'ozone à 90° SZA et 510 nm en fonction de l'épaisseur optique et des propriétés géométriques des nuages de type Ib. L'amplitude du biais augmente avec l'épaisseur optique et l'altitude des nuages. Les nuages bas fréquemment observés durant la campagne ( $\tau=0.08$ ,  $\Delta Z=9$  km,  $Z=18$  km) affectent la mesure de l'ozone de 4 à 5 % alors que les plus élevés ( $\tau=0.08$ ,  $\Delta Z=5$  km,  $Z=22$  km) entraînent une réduction de 7 à 8 % environ.



**Figure 51:** Variation apparente du facteur d'amplification de l'ozone à 90° SZA et 510 nm en fonction des propriétés optiques et géométriques des PSC de type Ib. L'altitude (Alt) et l'épaisseur géométrique (Ep) du nuage sont exprimées en km.

### Conclusion

Nous avons montré que la présence de nuages dans la stratosphère modifie les facteurs d'amplification de la mesure de l'ozone par spectrométrie visible du ciel au zénith. L'amplitude du biais augmente avec l'altitude, l'épaisseur optique et géométrique du nuage et peut atteindre 30% en présence de nuages particulièrement denses comme celui observé le 6 février 1990 au matin à Kiruna ( $\tau=0.12$  à  $1 \mu\text{m}$ ). Cependant, après correction des mesures, une diminution de la colonne verticale de l'ozone de 50 UD environ a bien été observée ce jour-là. Ce mini-trou d'ozone est probablement réel et s'explique par un soulèvement de l'air, sans faire intervenir de destruction rapide. Durant la campagne CHEOPS III, de nombreux PSC ont été observés par le SAOZ. Les quantités d'ozone mesurées sont à augmenter de 4 à 5% en présence de PSC bas et 7 à 8% en présence de PSC élevés.

## 2) INFLUENCE DES AEROSOLS VOLCANIQUES SUR LA MESURE DE L'OZONE

A l'automne 1991, les 8 SAOZ (table 1, chapitre I) qui participent à la campagne EASOE (European Arctic Stratospheric Ozone Experiment) ont observé en Arctique, une diminution de près de 30% de l'ozone par rapport aux années précédentes à la même époque et un indice de couleur systématiquement bleu (entre 0.6 et 0.4) au crépuscule, bien que les températures stratosphériques soient incompatibles avec les conditions de formation de nuages. En Antarctique, un SAOZ installé à Dumont d'Urville depuis 1988 observe depuis novembre 1991 et encore actuellement (donc en été local), une diminution de 10 à 15% de l'ozone par rapport aux années précédentes à la même époque et un indice de couleur systématiquement bleu (entre 0.6 et 0.4). Les éruptions du volcan philippin Pinatubo en juillet 1991, qui a été la plus forte depuis près de 150 ans, et accessoirement Hudson au Chili, ont injecté dans la stratosphère 3 fois plus de poussières que le volcan El Chichon en 1982 au Mexique (d'après les observations effectuées par SAGE II: Stratospheric Aerosol and Gas Experiment à bord du satellite Nimbus 7 de la NASA). La question qui se pose est de savoir dans quelle mesure la diminution de l'ozone observée tant en Arctique qu'en Antarctique n'est pas due à la perturbation des mesures.

La figure 52 présente en fonction de l'altitude, l'épaisseur optique par km à 550 nm, de la couche d'aérosols observée par occultation solaire (courbe 3) par un SAOZ embarqué en ballon le 28 novembre 1991 au dessus de Sodankyla (Finlande). L'épaisseur optique maximum est située vers 18 km d'altitude et vaut  $8.8 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1}$ . L'épaisseur optique verticale totale est de  $5.5 \cdot 10^{-2}$ . Le coefficient de dépendance en longueur d'onde  $\alpha$  mesuré est de 1. Les particules ont une dimension voisine de la longueur d'onde, c'est à dire de quelques dixièmes de micron. Les courbes (2) à (4) correspondent à l'épaisseur optique du nuage observé, multipliée par un coefficient pour que l'épaisseur optique au pic du nuage soit égal à respectivement 2, 5 et  $20 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1}$ . Ces profils verticaux d'atténuation et le coefficient de dépendance en longueur d'onde ( $\alpha=1$ ) de l'interaction ont été introduits dans le modèle de transfert radiatif en plus des interactions déjà existantes dans les conditions standard 60° N en hiver. La fonction de phase de la loi de diffusion des particules du nuage a été supposée identique à celle des aérosols de fond ( $k/\beta_{90} = 40$ ). Le flux atténué est supposé entièrement rediffusé dans toutes les directions. Le profil vertical de l'ozone n'a pas été modifié et correspond à celui du modèle standard à 60° N en hiver.

Les indices de couleur calculés par le modèle sont représentés en traits pleins sur la figure 53. Les courbes sont numérotées de manière identique à la distribution verticale de l'épaisseur optique (figure 52). La courbe 0 correspond au résultat du modèle dans les conditions standard 60° N en hiver (donc sans aérosols d'origine volcanique).

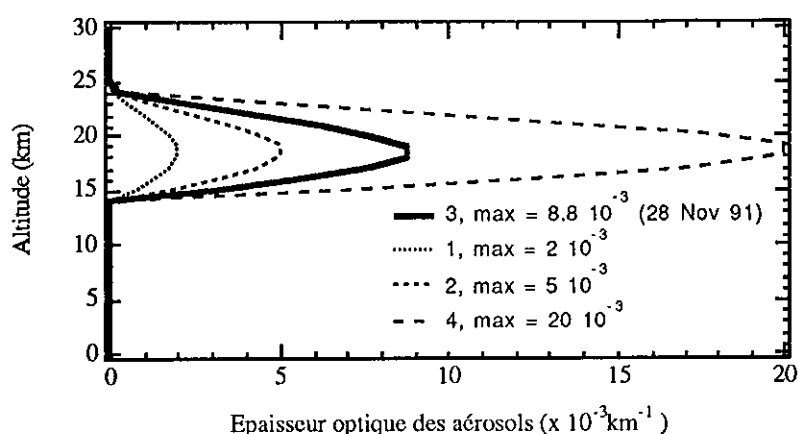


Figure 52: La couche d'aérosol d'origine volcanique mesurée (courbe 3) par un SAOZ embarqué en ballon le 28 novembre 1991 au dessus de Sodankyla (Finlande, 67°N). Les courbes 1, 2 et 4 en pointillés représentent le même nuage dont l'épaisseur optique a été multipliée pour que le maximum d'atténuation situé à 18 km soit égal à la valeur indiquée.

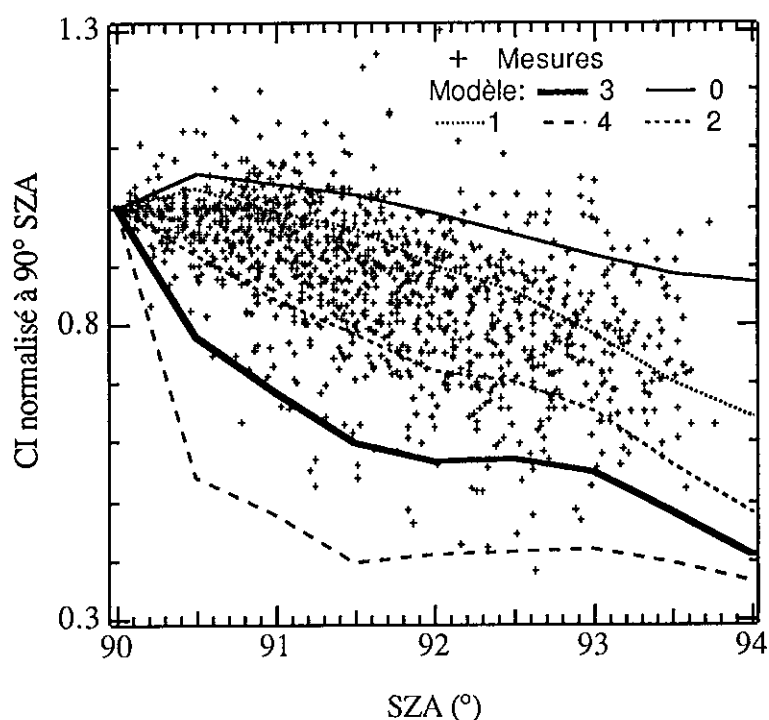


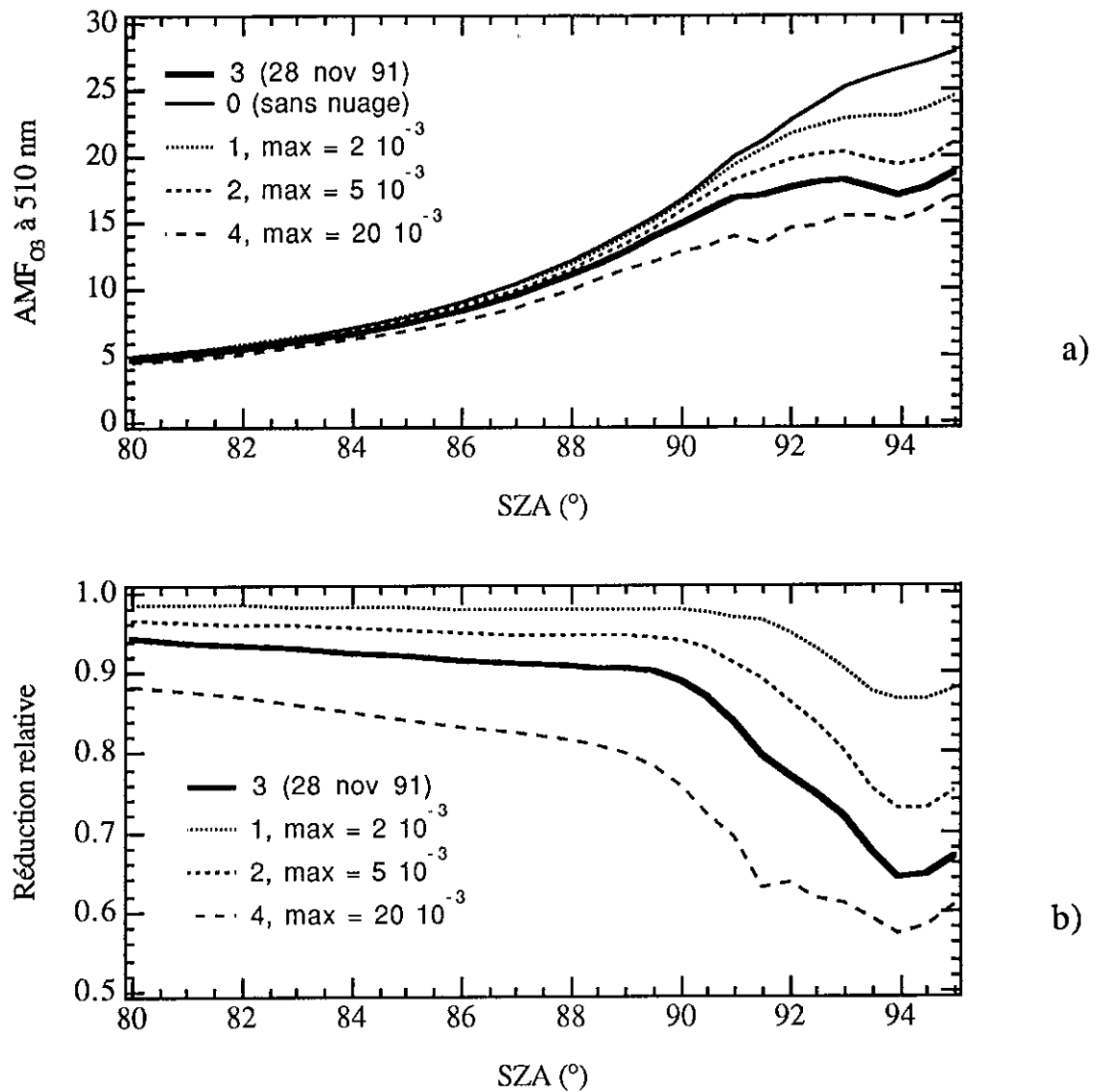
Figure 53: Les indices de couleur calculés par le modèle en présence des couches d'aérosols présentés sur la figure 52 avec une numérotation identique. La courbe 0 correspond à une stratosphère sans poussières volcaniques. Les croix indiquent les valeurs mesurées par le SAOZ à Sodankyla entre le 10 septembre (jour julien 282) et le 20 décembre (jour julien 354) 1991 (70 crépuscules).



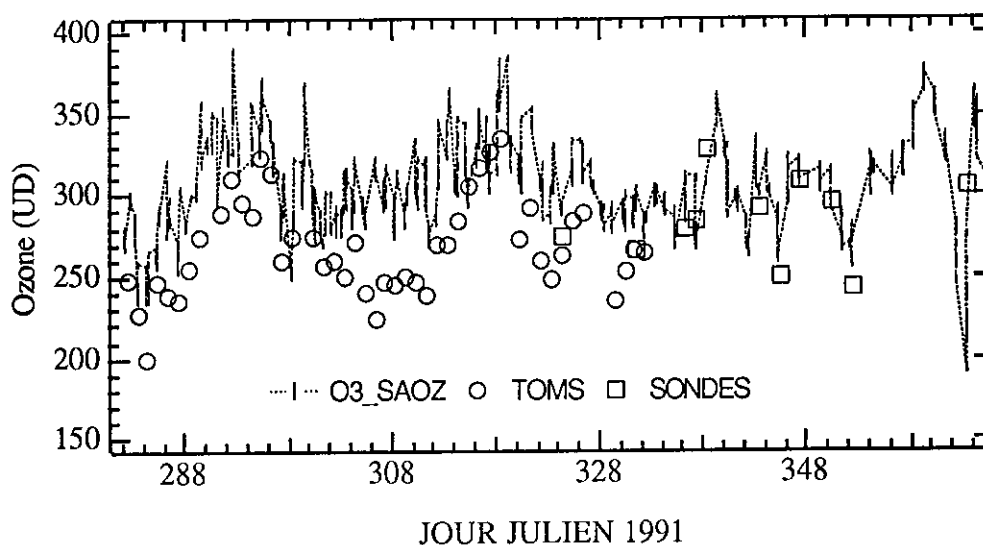
Les mesures de l'indice de couleur (ou rapport des flux à 550 et 350 nm corrigés des absorptions par  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $O_4$  et  $H_2O$  et normalisé à  $90^\circ$  SZA) effectuées par le SAOZ en 1991 à Sodankyla sont représentés par des croix. Dans la première partie de l'année (figure 53a), le SAOZ a observé des indices de couleur voisins des résultats du modèle sans aérosol d'origine volcanique dans la stratosphère, mais systématiquement depuis le début de la campagne (figure 53b), les bleuissements atteignent 0.5 à  $93-94^\circ$  SZA, ce qui n'était jamais arrivé avant (sauf en présence de PSC bas et épais) au cours de quatre années d'observation depuis l'hiver 1988. Ceci confirme que les bleuissements sont dus à la présence d'aérosols dans la stratosphère. La courbe 2, qui correspond à une épaisseur optique au maximum du nuage à  $5 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1}$ , est la moyenne observée durant cette période.

La figure 54a présente les facteurs d'amplification de l'ozone à 510 nm calculés par le modèle entre  $80$  et  $95^\circ$  SZA pour les différentes hypothèses des épaisseurs optiques. Le facteur de masse d'air diminue lorsque l'épaisseur optique du nuage augmente. La figure b montre que la réduction relative du facteur d'amplification (soit le rapport entre les facteurs calculés sans et avec des poussières) augmente à distance zénithale solaire élevée. Le biais est maximum vers  $94^\circ$  SZA où il atteint 40%. Le biais introduit à  $90^\circ$  SZA, donc la correction que l'on doit apporter sur la mesure d'ozone, est de l'ordre de 10% pour un nuage correspondant à celui généralement observé (courbe 2).

Les mesures de l'ozone par spectrométrie visible à Sodankyla entre le 10 septembre et le 20 décembre 1991 corrigées de cet effet sont représentées sur la figure 55, ainsi que les résultats des sondages (E. Kyro, communication privée) et les observations de TOMS. La correction apportée correspond à environ 30-40 UD et la valeur moyenne, qui était située autour de 250-260, est maintenant de 280-290 UD, ce qui est en accord avec mesures effectuées par les sondes. Il apparaît que les valeurs mesurées par TOMS sont régulièrement inférieures de 30-40 UD environ à celles obtenues par le SAOZ. Une différence systématique entre SAOZ et TOMS a déjà été remarquée en Arctique et en Antarctique en hiver (jusqu'à 30% au solstice). Cette différence augmente lorsque TOMS effectue des mesures près du terminateur et lorsque la température de la stratosphère diminue (Goutail and Pommereau, 1990), ce qui explique la différence systématique moyenne de 30-40 UD entre TOMS et SAOZ observée entre le 10 septembre et le 20 décembre 1991. En 1990, les valeurs mesurées par le SAOZ à la même époque étaient de l'ordre de 350 UD. La quantité d'ozone, mesurée localement au Nord de la Scandinavie, est donc de 60 UD environ plus faible en 1991 qu'en 1990.



**Figure 54:** Influence des aérosols sur le facteur d'amplification de l'ozone à 510 nm. a) Les valeurs calculées en fonction de l'épaisseur optique du nuage de poussières. b) La réduction relative du facteur d'amplification.



**Figure 55:** L'ozone mesuré par le SAOZ entre le 10 septembre et le 20 décembre 1991 à Sodankyla. Le biais dû à la présence d'aérosols dans la stratosphère est corrigé. Les mesures effectuées par des sondes sont représentées par des carrés. Elles sont en accord avec celles du SAOZ. Les mesures effectuées par TOMS sont représentées par des cercles et sont systématiquement inférieures à celles du SAOZ.

En conclusion, nous avons montré que les aérosols volcaniques denses avaient une forte influence sur la mesure de l'ozone par observation du ciel au zénith. Nous avons montré que les valeurs mesurées par le SAOZ depuis septembre 1991 et jusqu'à la fin de l'année au dessus de la Scandinavie devaient être augmentées d'environ 10%. Après correction des mesures, les valeurs obtenues restent cependant inférieures de 60 UD environ aux valeurs de 1990. L'origine de cette différence reste à identifier.

## **CHAPITRE V**

### **LA DETECTION DES NUAGES DANS L'ATMOSPHERE DE MARS**

L'objectif est de mettre au point un système d'observation des poussières, des nuages et de l'ozone dans l'atmosphère de Mars avec les moyens qui nous sont proposés, soit un capteur optique simple à 4 canaux spectraux qui sera envoyé sur la surface de la planète en 1994 et qui sera monté dans l'expérience METEGG à bord de deux petites stations de la mission Russe MARS 94. Le modèle de transfert radiatif, adapté à l'atmosphère de Mars, est l'outil qui permet de simuler les observations. Les résultats du modèle permettront de définir le capteur optique de l'expérience (longueurs d'onde d'observation, sensibilité, cycles de mesures, etc...) et seront plus tard le support de l'interprétation des observations qui nous parviendront à partir de 1995.

### 1) L'INSTRUMENT METEGG

L'expérience METEGG (METeorological EGG) consiste à créer un réseau météorologique sur Mars à l'aide de petites stations autonomes réparties sur tout le globe. METEGG entre dans le cadre de l'expérience franco-russe MARS 94 (lancement vers Mars prévu en 1994) qui est la première d'une série de deux missions programmées par l'Institut de Recherche Spatiale de l'Académie des Sciences de la CEI et GLAVCOSMOS (l'équivalent du CNES français). MARS 94 est actuellement en phase B de développement (tests et instrumentation). La mission comporte également un satellite en orbite qui permettra l'étude de la composition chimique de l'atmosphère martienne. Deux pénétrateurs seront lancés vers le sol pour étudier sa résistance.

Les stations météorologiques du réseau METEGG seront autonomes. Elles sont destinées à l'étude de la circulation générale et des conditions dans les couches limites de l'atmosphère de Mars.

METEGG / MARS 94 sera composée de deux petites stations légères (20 kg), lancées vers le sol de Mars (le lieu n'est pas encore déterminé) depuis le satellite et freinées dans leur descente par des parachutes. Chacune d'elle comprendra:

- des capteurs de température, pression, humidité et vitesse de vent;
- un capteur d'épaisseur optique de l'atmosphère;
- deux caméras, une à grand champ et une autre utilisée seulement durant la descente de la station vers le sol;
- un spectromètre de particules  $\alpha$ ;
- un séismomètre et,
- un magnétomètre.

### 2) LE CAPTEUR OPTIQUE

Le capteur optique de l'expérience METEGG est destiné à la détection des nuages et des tempêtes dans l'atmosphère de Mars et éventuellement à la mesure de l'ozone. Obtenues sur une grande échelle et de façon régulière (48 mesures par jour et par station pendant 2 ans), les observations permettront l'étude des tempêtes (variations saisonnières, durées), des cycles de l'eau sous forme de nuages et des variations

saisonnnières de l'ozone. Le suivi de l'épaisseur optique des couches de poussières soulevées par les tempêtes donneront accès au temps de sédimentation. Les propriétés de diffusion (dépendance en longueur d'onde) serviront à déterminer leur taille. Les nuages et l'ozone entrent dans le bilan radiatif de l'atmosphère de Mars. Leur étude permettra une meilleure compréhension du profil vertical de la température.

Le capteur optique (figure 56) est conçu pour effectuer des observations du ciel au zénith durant le crépuscule et du soleil direct en cours de journée. Pour éviter l'emploi d'un pointeur, le système optique a un grand champ d'ouverture (presque un demi-espace) et il est surmonté d'un masque qui permet d'observer le zénith durant le crépuscule et alternativement le zénith et le soleil durant la journée. Comme le zénith n'est jamais masqué (pas d'obturation mécanique), les observations solaires contiennent une composante zénithale qui doit être soustraite, d'où l'alternance des observations. Les rayons lumineux traversent le masque et une lentille conique à grand champ, puis sont dirigés par un faisceau de fibres optique vers 4 photodiodes sur lesquelles des filtres permettent de sélectionner les domaines de longueur d'onde de mesure (à définir). Le signal reçu par les détecteurs est amplifié puis transmis au bloc de gestion de la station qui transmet l'information à l'observateur.

L'instrument est simple, car une mission spatiale comporte de nombreuses restrictions (poids d'une expérience, consommation, quantité d'information transmissible). Il est prévu pour fonctionner pendant 2 ans à raison de 48 mesures sur 4 domaines spectraux par jour en moyenne (contraintes énergétiques) et pèse 140 g.

Le masque est une demie-sphère transparente au sommet et opaque sur les cotés avec des trous répartis régulièrement. Il permet de cacher le rayonnement solaire direct pendant les mesures au zénith durant le crépuscule. L'observation du rayonnement solaire direct est effectuée à travers les trous pendant la journée. Le masque est surélevé de 3 cm par rapport à la surface de la station, pour éviter l'ensablement durant les tempêtes et pour permettre un champ d'observation dégagé. Sous le masque, une lentille conique élargit le champ d'observation du faisceau de fibre optique à près d'un demi espace. La fibre transmet la lumière vers les photodiodes situées à l'intérieur de la station (contraintes thermiques). Sur chaque photodiode, un filtre sélectionne les domaines d'observation. 3 canaux ont des bandes passantes étroites (40 nm), le quatrième intègre le flux entre 250 et 600 nm. Le faisceau de fibres est partagé inégalement sur chaque photodiode, afin que les signaux soient tous du même ordre de grandeur lors de la digitalisation sur 8 bits (dynamique restreinte) effectuée dans le bloc central de la station (partie développée par l'Institut Météorologique de Finlande). Les mesures sont transmises sur Terre via le satellite en orbite autour de Mars.

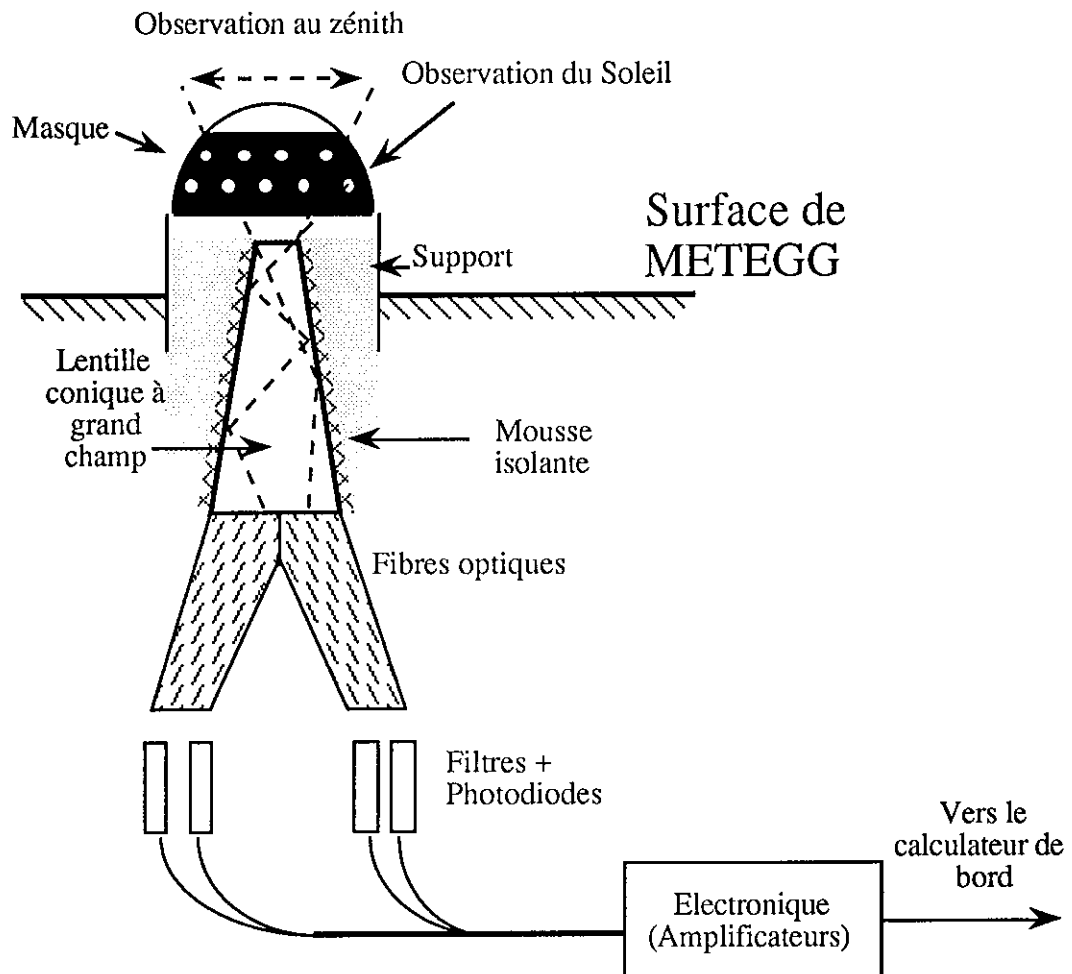


Figure 56: Le capteur optique de l'expérience METEGG.

Le seuil de sensibilité des photodiodes est d'environ  $1 \cdot 10^{-4} \mu\text{W}$  et le seuil de détectabilité du rayonnement à l'entrée de la lentille conique est, en tenant compte de la transmission dans la fibre et les filtres, de  $1 \cdot 10^{-4} \mu\text{W}/\text{cm}^2/\text{nm}$  environ, ce qui correspond à un rapport  $F/F_0$  égal à  $1 \cdot 10^{-5}$  semblable pour les quatre canaux spectraux, où  $F$  représente le flux reçu et  $F_0$ , le flux solaire hors atmosphère de Mars.

Les tests en cours permettront de déterminer les incertitudes absolues de mesure de chaque photodiode. Les incertitudes relatives des mesures, dues essentiellement à la digitalisation du signal sur 8 bits (échelle log.) sont évaluées à 10 % à faibles flux ( $95^\circ$  SZA) et 2-3% la journée.

### 3) SIMULATION DE L'ATMOSPHERE DE MARS

La simulation de l'observation de l'atmosphère de Mars depuis le sol est effectuée à l'aide du modèle de transfert radiatif présenté au chapitre II. La méthode de calcul des trajets optiques (le rayon de Mars est différent de celui de la Terre), les types d'interactions (atténuations et diffusions Rayleigh et Mie), l'atténuation par l'ozone uniquement et la structure de l'atmosphère en couches sphériques parallèles de 1 km d'épaisseur sont conservés. L'atmosphère de Mars s'étend jusqu'à 100 km d'altitude dans le modèle. La réfraction et la diffusion multiple ne sont pas prises en compte.

L'atténuation et la diffusion de type Rayleigh sont calculées avec une atmosphère composée principalement de CO<sub>2</sub> (96.4%) et de N<sub>2</sub> (3.4%). Le profil vertical de densité correspond à une densité de  $3 \cdot 10^{17}$  molécules/cm<sup>3</sup> au sol et une hauteur d'échelle de 8 km, valeurs moyennes généralement observées (Krasnopolsky, 1986). L'atténuation Rayleigh à 450 nm est représentée en fonction de l'altitude sur la figure 57. La fonction de phase de la diffusion et la dépendance en longueur d'onde des interactions sont similaires à celles décrites dans le cas de l'atmosphère de la Terre.

Très peu de mesures existent actuellement sur les propriétés de diffusion et d'atténuation de type Mie de l'atmosphère de Mars (aérosols de fond par ciel clair sans tempête, donc présents dans toute l'atmosphère). Nous savons seulement que les particules en suspension dans l'air sont solides, que l'épaisseur optique verticale totale est d'environ 0.23 à 450 nm ( $0.03 \text{ km}^{-1}$  au sol) et qu'elles ont une hauteur d'échelle de 8 km entre le sol et 20 km puis de 4 km au dessus (Blamont et al., 1991). Nous supposons le coefficient de dépendance en longueur d'onde égal à 0 et la fonction de phase identique à celle des aérosols de fond sur Terre.

Le profil vertical de concentration de l'ozone (figure 58) introduit dans le modèle de transfert radiatif est tiré d'un modèle photochimique de l'atmosphère de Mars (atmosphère humide, Parkinson and Huntén, 1972). Le maximum est situé entre 30 et 40 km. La densité de colonne verticale totale vaut  $1.42 \cdot 10^{15}$  molécules/cm<sup>2</sup>.

### 4) RESULTATS DU MODELE

Par ciel clair, le rapport  $F/F_0$  à 550 nm entre le flux reçu et le flux solaire est égal à  $1.4 \cdot 10^{-5}$  à 95° SZA qui est donc la limite de détection du système.



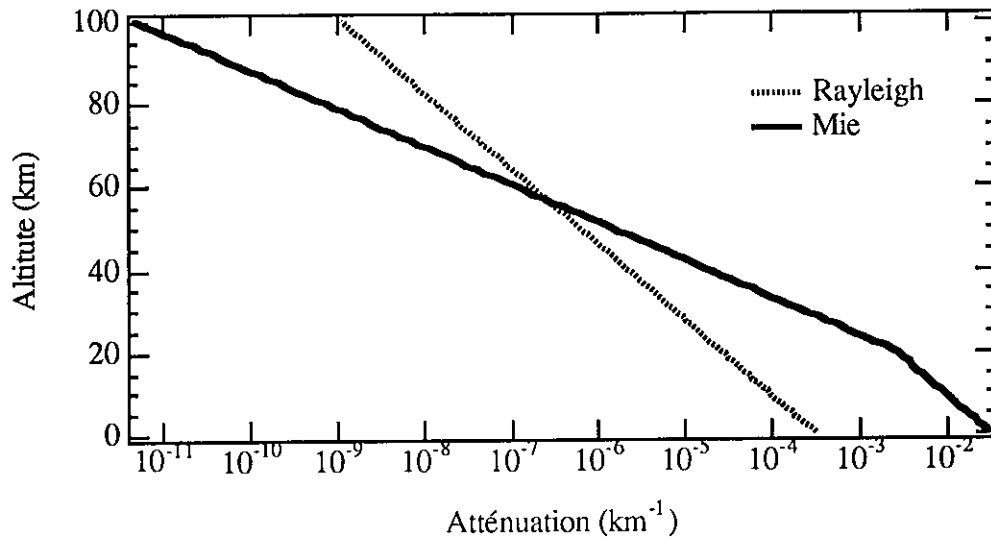


Figure 57: Profil vertical des atténuations Rayleigh et Mie à 450 nm.

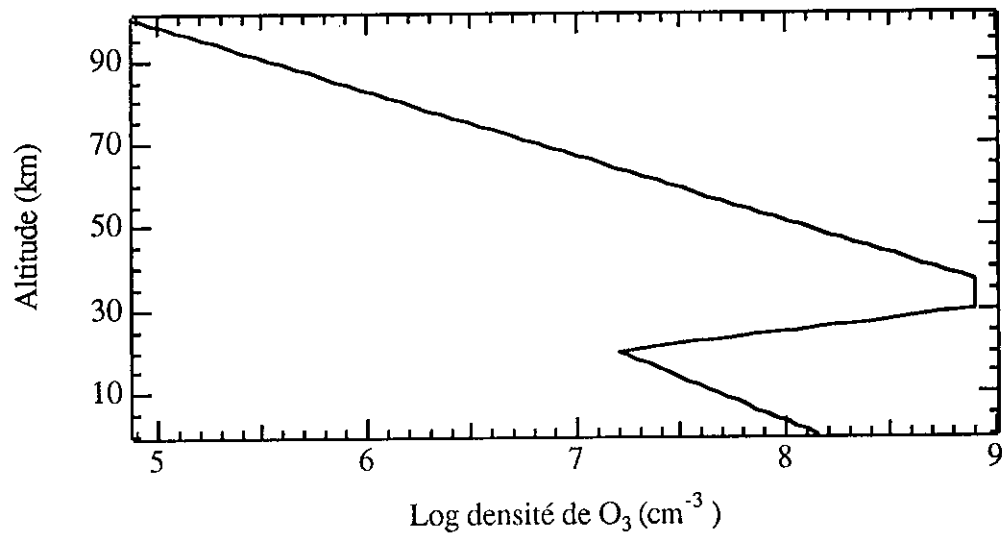
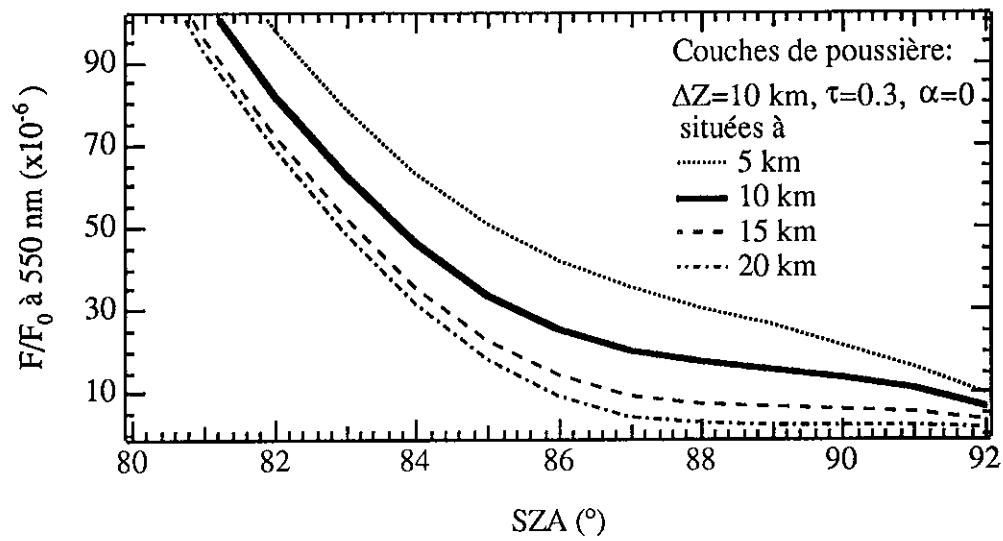


Figure 58: Concentration de l'ozone en fonction de l'altitude dans l'atmosphère de Mars.

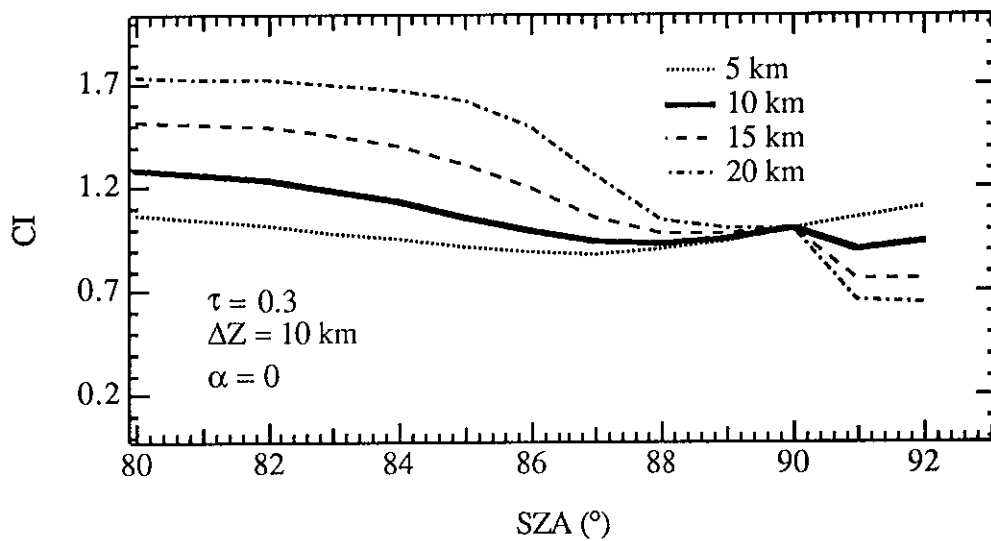
Les nuages et les poussières sont introduits dans le modèle de transfert radiatif en additionnant leurs propriétés optiques (atténuation, diffusion, fonction de phase) à celles déjà introduites de types Rayleigh et Mie (aérosols de fond) et de l'absorption par O<sub>3</sub>.

Les poussières soulevées par les tempêtes ont une épaisseur optique verticale  $\tau_a$  comprise entre 0 et 3, d'après les mesures effectuées par la sonde Viking (Pollack, 1979). L'atmosphère de Mars par ciel clair a une épaisseur optique verticale totale de  $\tau_0=0.3$ . Le flux solaire direct est diminué d'un facteur  $e^{(\tau_0+\tau_a)/\cos(\chi)}$  (approximation d'une atmosphère plane parallèle) en traversant l'atmosphère. A 70° SZA par ciel clair, ce facteur vaut 2.4. En présence de poussières d'une épaisseur optique de 0.1 ce facteur vaut 3.2 et le flux reçu par le détecteur est 30% inférieur, une différence détectable car supérieure aux incertitudes de mesures (2-3%). Le rapport entre le flux reçu et le flux solaire hors atmosphère, soit  $F/F_0$  est égal à  $4 \cdot 10^{-2}$  et est donc supérieur à  $1 \cdot 10^{-5}$  qui est le seuil de détectabilité de l'instrument. Cependant, la mesure en soleil direct est obtenue après soustraction de la composante zénithale. Si l'épaisseur optique de la couche de poussières augmente, la contribution relative de la composante zénithale augmente ainsi que l'incertitude sur la détermination du flux en soleil direct. L'épaisseur optique de la couche doit être inférieure à 2 pour que la précision des mesures soit de l'ordre de 20%. La mesure du flux total entre 250 et 600 nm en soleil direct permettra donc la détection des tempêtes. L'observation à 550 et 350 nm permettra de mesurer le coefficient de dépendance en longueur d'onde  $\alpha$  de l'atténuation par les poussières et de déterminer ainsi leur dimension.

Nous avons introduit des poussières ( $\tau$  vertical total à 1  $\mu\text{m}$ : 0.3,  $\alpha=0$ , fonction de phase identique à celle des aérosols de fond sur Terre soit  $k/\beta_{90}=40$ ) dans le modèle de transfert radiatif à 5, 10, 15 et 20 km d'altitude. L'observation du ciel au zénith est alors affectée par la présence d'un diffuseur supplémentaire dans l'atmosphère. La figure 59 présente le rapport  $F/F_0$  à 550 nm en fonction de la distance zénithale du soleil pour des couches de poussières à différentes altitudes. Ce rapport devient inférieur à la limite de détection, soit  $1 \cdot 10^{-5}$ , dès 86° SZA pour des poussières situées à 20 km d'altitude. Les couches situées entre 5 et 10 km d'altitude sont détectables jusqu'à 92° SZA et le rapport  $F/F_0$  augmente lorsque l'altitude diminue. Ce rapport sera utilisé pour déterminer l'altitude des poussières si elles sont situées près du sol. L'indice de couleur (rapport des flux entre 550 et 350 nm, normalisé à 1 à 90° SZA) est représenté sur la figure 60 en fonction de la distance zénithale du soleil. Les couches situées entre 15 et 20 km d'altitude génèrent un indice de couleur qui augmente à 84° SZA avec l'altitude du nuage. L'indice de couleur sera utilisé pour évaluer l'altitude des poussières si elles sont situées en altitude.



**Figure 59:** Le rapport  $F/F_0$  à 550 nm en fonction de la distance zénithale du soleil en présence de poussières à différentes altitudes.



**Figure 60:** La variation de l'indice de couleur en fonction de la distance zénithale du soleil en présence de poussières à différentes altitudes.

Les nuages matinaux de CO<sub>2</sub> et de glace d'eau ont une épaisseur optique de l'ordre de 0.01 à 0.05 et sont situés près du sol. Si ces nuages n'apparaissent que le matin, ils ne seront donc pas présents pendant les observations en soleil direct qui ne sont possibles que lorsque le soleil est situé entre 30 et 75° SZA. En observation zénithale, le modèle montre que ni le flux, ni l'indice de couleur ne sont suffisamment sensibles (<3% de variation) à la présence de nuages bas d'épaisseur optique inférieure à 0.1. La détection de ces nuages par le capteur optique n'est donc pas envisageable.

Les nuages en altitude (mésosphériques) introduits dans le modèle ont des épaisseurs optiques verticales totales qui atteignent 0.03 et un coefficient de dépendance en longueur d'onde égal à 0 ou 1 (Chassefière et al., 1991). La fonction de phase est supposée identique à celle des aérosols de fond sur Terre, soit  $k/\beta_{90}=40$ . L'altitude des nuages est comprise entre 20 et 50 km et leur épaisseur géométrique de 1 à 9 km. Le rapport  $F/F_0$  à 550 nm calculé par le modèle est représenté en fonction de la distance zénithale du soleil sur la figure 61. En présence de nuages mésosphériques situés au dessus de 30 km, ce rapport est supérieur à la limite de sensibilité de l'instrument ( $1 \cdot 10^{-5}$ ) jusqu'à 97-98° SZA. Par ciel clair, les observations ne sont plus possibles à angle supérieur à 95° SZA. La détection des nuages mésosphériques au dessus de 30 km est donc possible par la mesure du flux à 550 nm. L'indice de couleur calculé par le modèle est représenté sur la figure 62 en fonction de la distance zénithale du soleil. Les rougissemments sont obtenus à grandes distances zénithales solaire car les nuages sont très élevés. La distance zénithale solaire à laquelle se produit le rougissemment et son amplitude augmentent avec l'altitude du nuage. L'observation de la variation de l'indice de couleur normalisé à 1 à 90° SZA permettra donc de déterminer l'altitude des nuages mésosphériques. Notons que si le coefficient de dépendance en longueur d'onde  $\alpha$  est égal à 0, l'indice de couleur devient très peu sensible à la présence de ces nuages (<3% de variation) dont l'altitude ne peut alors être déterminée.

Le facteur d'amplification de l'ozone dans le visible à 510 nm ( $\sigma_{O_3} = 2.6 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$ ) calculé par le modèle ne dépasse pas 20, ce qui correspond à une épaisseur optique inférieure au % ( $20 \times 2.6 \cdot 10^{-19} \times 1.42 \cdot 10^{15} = 0.7\%$ ). L'ozone n'est donc pas mesurable à cette longueur d'onde (incertitude relative de l'ordre de 2-3%). Par contre, vers 270 nm, bien que le facteur d'amplification des observations zénithales soit seulement de 10 à 90° SZA, la section efficace de O<sub>3</sub> est suffisamment grande ( $7.8 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ ) pour que près de 11% du signal ( $10 \times 7.8 \cdot 10^{-18} \times 1.42 \cdot 10^{15} = 11\%$ ) soit absorbé. A 350 nm, l'absorption par l'ozone est quasiment nulle. Les observations crépusculaires du ciel au zénith à 350 et 270 nm permettront de mesurer l'ozone par la méthode différentielle à deux longueurs d'onde.

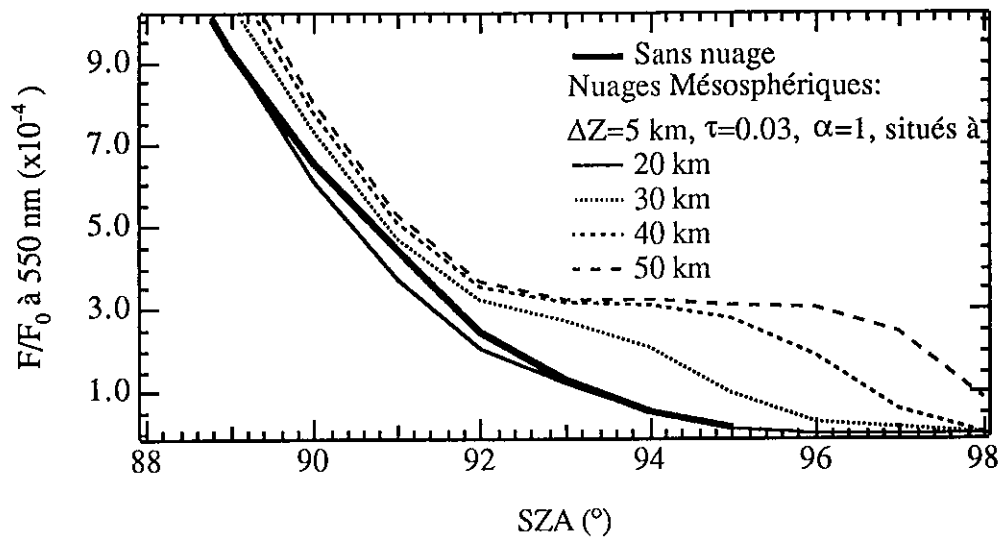


Figure 61:  $F/F_0$  à 550 nm en fonction de la distance zénithale solaire pour des nuages mésosphériques situés entre 20 et 50 km d'altitude.

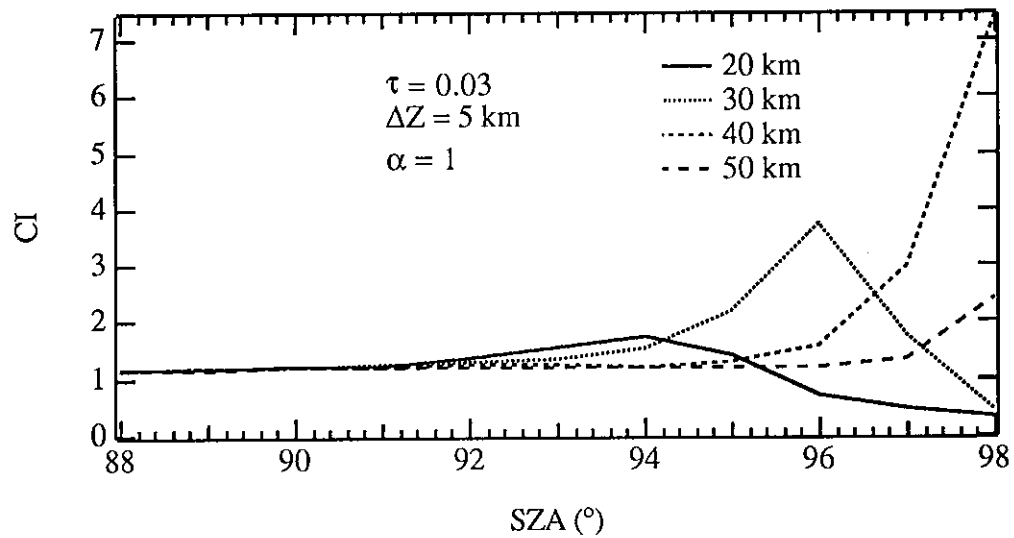


Figure 62: La variation crépusculaire de l'indice de couleur en fonction de l'altitude des nuages élevés (mésosphériques) dans l'atmosphère de Mars.

### 5) RECOMMANDATIONS

Devant trois des photodiodes, un filtre permettra une sélection des longueurs d'onde que l'on cherche à détecter: 270, 350 et 550 nm. Les filtres ont des bandes passantes de 40 nm, nécessaires pour que les flux soient détectables, mais suffisamment sélectifs pour éviter les recouvrements et garder une bonne dynamique des mesures. La dernière photodiode intégrera le flux sur tout son domaine de sensibilité (250-600 nm). Les poussières soulevées par les tempêtes seront détectées la journée d'après les mesures du flux total en soleil direct si l'épaisseur optique de la couche est inférieure à environ 2. Les flux à 350 et 550 nm permettront la mesure du coefficient de diffusion des particules ( $\alpha$ ) la journée en soleil direct et la détermination de l'altitude et de l'épaisseur géométrique des couches au crépuscule par observation au zénith. Les nuages matinaux bas et fins composés de CO<sub>2</sub> et de glace d'eau ne seront pas détectables par l'instrument. Les nuages mésosphériques pourront être détectés et leur altitude déterminée à l'aide des flux à 550 nm et de l'indice de couleur au crépuscule. L'observation à 270 et 350 nm permettra la mesure de l'ozone au crépuscule par la méthode différentielle à deux longueurs d'onde.



## CONCLUSION

Notre objectif était de mettre au point une méthode de détection des nuages et des poussières depuis le sol avec deux applications principales: (i) l'étude des nuages stratosphériques polaires et (ii) celle des nuages et des tempêtes de poussières à la surface de Mars. Pour y parvenir, nous avons utilisé, d'une part les moyens qui étaient à notre disposition, c'est à dire, les observations effectuées par le SAOZ, et d'autre part, un modèle de transfert radiatif que nous avons construit.

L'instrument SAOZ était destiné à la mesure de l'ozone en régions polaires. L'analyse des spectres du ciel au zénith durant le crépuscule a permis la mesure de l'ozone et  $\text{NO}_2$  sur la ligne de visée. La précision des mesures est de l'ordre de 2% pour l'ozone et 5% pour  $\text{NO}_2$ . En fin d'analyse, les flux à 350 et 550 nm, corrigés des absorptions par l'ozone,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{O}_4$  et  $\text{H}_2\text{O}$ , sont restitués avec une précision de l'ordre de 0.3%. Ces flux dépendent des propriétés de diffusion de l'atmosphère, c'est à dire des interactions de type Rayleigh et Mie.

Le modèle de transfert radiatif a été construit en diffusion simple. Sa validité a été démontrée en comparant les calculs des facteurs d'amplification de l'ozone et de  $\text{NO}_2$  avec les observations effectuées par le SAOZ durant la campagne CHEOPS III à Kiruna en hiver 1990. Le SAOZ mesure l'ozone dans le visible au crépuscule entre  $87^\circ$  et  $91^\circ$  SZA avec une précision de 5%. L'incertitude du calcul du facteur d'amplification de l'ozone à 510 nm au crépuscule dépend principalement de son profil vertical de concentration et relativement moins de la réfraction et de la diffusion multiple. Un modèle de transfert radiatif simple est donc suffisant pour interpréter les observations des constituants stratosphériques.

En première application de l'emploi du modèle de transfert radiatif, une méthode de détection des nuages stratosphériques polaires a été développée. L'observation par le SAOZ de l'indice de couleur du ciel au zénith au crépuscule permet la détection systématique des nuages stratosphériques polaires par tout temps. Les rougissemments et les bleuissements observés durant CHEOPS III ont été interprétés à l'aide du modèle dans lequel les propriétés diffusantes et atténuatrices des nuages ont été introduites. Les rougissemments sont générés par des nuages fins à haute altitude (20-26 km) et sont plus intenses en présence de PSC composés de cristaux de glace qu'en présence de PSC de type NAT. Les bleuissements sont générés par des nuages bas et géométriquement épais



(16-20 km,  $5 < \Delta Z < 10$  km) et sont d'autant plus intenses que les nuages sont optiquement épais. Tant pour les rougissemments que pour les bleuissements, c'est la partie visible (550 nm) du rayonnement qui est soit amplifiée, soit atténuée par la présence de nuages. Durant la campagne CHEOPS III, les rougissemments, donc des nuages fins et élevés ont été observés lorsque la température à 30 hPa (environ 21.5 km) était inférieure à celle de condensation des cristaux de NAT ce qui confirme la présence de nuages élevés. Les bleuissements, donc des nuages bas et épais, ont été observés lorsque la température à 50 hPa (environ 18.5 km) était inférieure à celle de condensation des cristaux de NAT ce qui confirme la présence de nuages bas.

En seconde application de l'emploi du modèle de transfert radiatif, il a été démontré que la présence de nuages dans la stratosphère modifie les facteurs d'amplification de la mesure de l'ozone par spectrométrie UV-visible du ciel au zénith. L'amplitude du biais augmente avec l'altitude, l'épaisseur optique et géométrique du nuage et peut atteindre 30% en présence de nuages particulièrement denses comme celui observé le 6 février 1990 au matin à Kiruna ( $\tau=0.12$  à  $1 \mu\text{m}$ ). Cependant, après correction des mesures, une diminution de la colonne verticale de l'ozone de 50 UD environ a bien été observée ce jour-là. Ce mini-trou d'ozone est donc probablement réel et peut s'expliquer par l'injection d'air troposphérique pauvre en ozone dans la stratosphère, sans faire intervenir de destruction rapide. Durant la campagne CHEOPS III, de nombreux PSC ont été observés par le SAOZ. Les quantités d'ozone mesurées sont à augmenter de 4 à 5% en présence de PSC bas et 7 à 8% en présence de PSC élevés.

L'influence des aérosols volcaniques issues en juillet 1991 du volcan philippin Pinatubo sur la mesure de l'ozone par observation du ciel au zénith a été évaluée à l'aide du modèle. Les valeurs de l'ozone mesurées par le SAOZ depuis septembre 1991 jusqu'à la fin de l'année au dessus de la Scandinavie doivent être augmentées d'environ 10%. Après correction des mesures, les valeurs obtenues sont cependant inférieures de 60 UD environ aux valeurs obtenues en 1990.

La dernière application du modèle se rapportait à l'étude de l'atmosphère de Mars, afin de définir le capteur optique de l'expérience METEGG. Ce capteur sera composé de quatre photodiodes. Devant trois des photodiodes, un filtre permettra une sélection des longueurs d'onde que l'on cherche à détecter: 270, 350 et 550 nm. La dernière photodiode intégrera le flux sur tout son domaine de sensibilité (250-600 nm). La mesure en soleil direct du flux total permettra la détection des tempêtes. Les observations du ciel au zénith durant le crépuscule à 350 et 550 nm permettront de déterminer l'altitude des nuages de poussières. Les nuages de glace d'eau et de  $\text{CO}_2$  ne seront pas détectables par l'instrument. Les nuages mésosphériques pourront être détectés à l'aide des mesures du

flux à 550 nm et leur altitude déterminée par l'observation de l'indice de couleur durant le crépuscule. Les observations au zénith à 270 et 350 nm permettront de mesurer l'ozone au crépuscule.



# REFERENCES

- Amoruso A., M. Cacciani, A. di Sarra and G. Fiocco, Absorption cross-section of ozone in the 590-610 nm region at T=230 K and T= 299 K., J. Geophys. Res., **95**, 20565-20568, 1990.
- Blamont, J.E., E. Chassefière, J.P. Goutail, B. Mège, M. Nunes-Pinharanda, G. Souchon, V.A. Krasnopolsky, A.A. Krysko and V.I. Moroz, Vertical profiles of dust and ozone in the Martian atmosphere deduced from solar occultation measurements, Nature, **341**, 600, 1989.
- Blamont, J.E., E. Chassefière, J.P. Goutail, B. Mège, M. Nunes-Pinharanda, G. Souchon, V.A. Krasnopolsky, A.A. Krysko and V.I. Moroz, Vertical profiles of dust and ozone in the Martian atmosphere deduced from solar occultation measurements, Planet. and Space Sci., **39**, 175, 1991.
- Blamont, J.E., J.P. Pommereau et G. Souchon, Observation crépusculaire du NO<sub>2</sub> stratosphérique, C.R. Acad. Sci. Paris, **281**, série B, 247-252, 1975.
- Brewer A.W., C.T. Mc Elroy and J.B. Kerr, Nitrogen dioxide concentrations in the atmosphere, Nature, **246**, 129-133, 1973.
- Browell, E.V., C.F. Butler, S. Ismail, P.A. Robinette, A.F. Carter, N.S. Higdon, O.B. Toon, M.R. Schoeberl and A.F. Tuck, Airborne lidar observations in wintertime Arctic stratosphere: polar stratospheric clouds, Geophys. Res. Lett., **17**, 385-388, 1990.
- Cacciani M., A. di Sarra, G. Fiocco and A. Amoruso, Absolute determination of the cross sections of ozone in the wavelength 339-355 nm at temperatures 220-293 K, J. Geophys. Res., **94**, 8485-8490, 1989.
- Chassefière E., J.E. Blamont, V.A. Krasnopolsky, O.I. Korablev, S.K. Atreya, R.A. West, Vertical structure and granulometry of Martian aerosols from solar occultation measurements, submitted to Icarus, 1991.
- Crutzen P.J. and F. Arnold, Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: A major cause for the springtime "ozone hole", Nature, **324**, 652-655, 1986.
- Cunnold, D.M., J.M. Zawodny, W.P. Chu, J.P. Pommereau, F. Goutail, J. Lenoble, M.P. McCormick, R.E. Veiga, D. Murcray, N. Iwagami, K. Shibasaki, P.C.

- Simon and W. Peetermans, Validation of Sage II NO<sub>2</sub> measurements, J. Geophys. Res., 96, 12913, 1991.
- Farman J.C., B.G. Gardiner and J.D. Shanklin, Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO<sub>x</sub>/NO<sub>x</sub> interaction, Nature, 315, 207-210, 1985.
- Goutail F. and J.P. Pommereau, Comparison of ground-based SAOZ and TOMS total ozone observations at polar latitudes, Proc. First European Workshop on Polar Stratospheric Ozone Research, Schliersee, 37, October 1990.
- Greenblatt G.D., J.J. Orlando, J.B. Burkholder and A.R. Ravishankara, Absorption measurements of oxygen between 330 and 1140 nm, J. Geophys. Res., 95, 18577, 1990.
- Hamming R.W., Digital filters, Prentice-Hall, Inc., 157-159, 1977.
- Handbook of Geophysics and Space Environments, Mc Graw-Hill, New York, 1965.
- Hanson, D. and K. Mauersberger, Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: implications for the south polar stratosphere, Geophys. Res. Lett., 15, 855-858, 1988.
- Herman, M., R. Santer, L. Gonzalez, P. Lecomte, C. Verwaerde, Observation of PSC in polarized light, Geophys. Res. Lett., 18, 783, 1991.
- Hofmann, D.J., T.L.Deshler, P. Amedieu, W.A. Matthews, P.V. Johnston, Y. Kondo, W.R. Sheldon , G.J. Byrne and J.R. Benbrook, Stratospheric clouds and ozone depletion in the Arctic during January 1989, Nature, 340, 117, 1989.
- Hofmann, D.J. and T. Deshler, Balloonborne measurements of polar stratospheric clouds and ozone at -93°C in the Arctic in February 1990, Geophys. Res. Lett., 17, 2185-2188, 1990.
- Hofmann, D.J., T. Deshler, F. Arnold and H. Schlager, Balloon observations of nitric acid aerosol formation in the Arctic stratosphere: II. Aerosol, Geophys. Res. Lett., 17, 1279-1282, 1990.
- Hulst van de, H.C., Light scattering by small particules, New York, Wiley, 1957.
- Junge C.E., Our knowledge of the physics-chemistry of aerosols in the undisturbed marine environment, J. Geophys. Res., 77, 5183-5200, 1972.

- Kent G.S., L.R. Poole and M.P. McCormick, Characteristics of Arctic polar stratospheric clouds as measured by airborne lidar, J. Atmos. Sci., **43**, 2149-2161, 1986.
- Krasnopolsky, V., Photochemistry of the atmosphere of Mars and Venus, Springer, Berlin, 1986.
- Kinne S. and O.B. Toon, Radiative effects of polar stratospheric clouds, Geophys. Res. Lett., **17**, 373-376, 1990.
- Krueger A., Antarctic and Arctic total ozone extreme minima, Proc. Quad. Ozone Symposium, 1988, Deepak Pub, 1989.
- Larsen S.H.H. and T. Henriksen, Persistent Arctic ozone layer, Nature, **343**, 124, 1990.
- Lefèvre F., Etude des perturbations de l'ozone stratosphérique aux régions polaires à l'aide de mesures satellitaires et d'un modèle de circulation générale, Thèse de Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Toulouse, 1991.
- Lefèvre F. and D. Cariolle, Total ozone measurements and stratospheric clouds detection during the AASE and the Technoops Arctic balloon campaigns, Geophys. Res. Lett., **18**, 33-36, 1990.
- Lefèvre F., L.P. Riishojgaard, D. Cariolle and P. Simon, Modelling the February 1990 PSC type II event and its potential impact on the northern hemisphere ozone content, J. Geophys. Res., in press, 1991.
- McCormick, M.P., H.M. Steele, P. Hamill, W.P. Chu and T.J. Swissler, Polar stratospheric cloud sightings by SAM II, J. Atmos. Sci., **39**, 1387-1397, 1982.
- McCormick, M.P. and C.R. Trepte, Polar stratospheric optical depth observed between 1978 and 1985, J. Geophys. Res., **92**, 4297, 1987.
- McKenna D.S., R.L. Jones, J. Austin, E.V. Browell, M.P. McCormick, A.J. Krueger and A.F. Tuck, Diagnostic studies of the antarctic vortex during the 1987 Airborne Antarctic Ozone Experiment: ozone miniholes, J. Geophys. Res., **94**, 11641, 1989.
- Meier, R.R., D.E. Anderson and M. Nicolet, Radiation transfer in the troposphere and stratosphere from 240-1000 nm, I, General analysis, Planet. Space Sci., **30**, 923, 1982.

- Mount, G.M., Sanders R.W., Schmeltekopf A.L., and S.Solomon, Visible spectrometry at McMurdo Station, Antarctica. 1. Overview and daily variations of NO<sub>2</sub> and O<sub>3</sub>, austral spring 1986, J. Geophys. Res., 92, 8320-8328, 1986.
- Nicolet M., Radiation field in the troposphere and stratosphere, 2- Numerical analysis, Planet Space Sci., 30, 935-940, 1982.
- Nojaukat B., K. Labitske, R. Lenshow, K. Petzolt and R-C. Wohlfart, The stratospher winter 1989/90, Beilage zur Berliner Wetterharte, Free University of Berlin, 1990.
- Noxon J.F., Stratospheric NO<sub>2</sub> Global behavior, J. Geophys. Res., 84, 5067-5076, 1979.
- Osborn, M.T., L.R. Poole and and Pi-Huan Wang, SAM II and lidar aerosol profile comparaisons during AASE, Geophys. Res. Lett., 17, 401-404, 1990.
- Ovarlez J., Stratospheric water measurements during CHEOPS III, Geophys. Res. Lett., 18, 771-774, 1991.
- Parkinson J.D. and Hunten D.M., Spectroscopy and aeronomy of O<sub>2</sub> on Mars, J. Atmosp. Sci., 29, 1380, 1972.
- Perliski L., NDSC UV-visible data Analysis intercomparaison, Boulder, Colorado, July 23-25, 1991, in press.
- Pollack, J.B., D.D Colburn, F. Michael Flasar, R. Kahn, C.E. Carlston and D. Pidek, Properties and effects of dust particles suspended in the Martian atmosphere, J. Geophys. Res., 84, 2929-2045, 1979.
- Pommereau, J. P., and F. Goutail, O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> ground-based measurements by visible spectrometry during arctic winter and spring 1988, Geophys. Res. Lett., 15, 891-894, 1988a.
- Pommereau, J. P. and F. Goutail, Stratospheric O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> observations at the southern polar circle in summer and fall 1988, Geophys. Res. Lett., 15, 895-897, 1988b.
- Pommereau, J.P. and F. Goutail, Ground-based and space-borne instrument for atmospheric trace species measurement by UV-Visible spectrometer, Progress in Atmospheric Physics, D. Reidel Publishing Company, 1988c.
- Pommereau, J.P., F. Goutail, M. Pinharanda, J. Piquard and A. Sarkissian, Ground-based total ozone measurements in the visible Chappuis bands, Proc. First

European Workshop on Polar Stratospheric Ozone Research, Schliersee, 41, October 1990.

Pommereau J.P, Goutail F., Sarkissian A. and McKenna X., soumis à Geophys. Res. Lett., 1991.

Poole, L.R., Airborne lidar studies of arctic polar stratospheric clouds, Ph. D. Dissertation, The University of Arizona, 1987.

Poole L.R. and M.P. McCormick, Airborne lidar observations of Arctic polar stratospheric clouds: Indication of two distinct growth stages, Geophys. Res. Lett., 15, 21-23, January 1988.

Queney, Elements de Météorologie, Masson et Cie, ed. 1974.

Roosendaal, M.van, C. Hermans, M. de Mazière, P.C. Simon, A. Sarkissian, J. Piquard, F. Goutail, J.P. Pommereau, UV-vis Measurements of stratospheric trace species at the Jungfraujoch, Proc. First European Workshop on Polar Stratospheric Ozone Research, Schliersee, 85, October 1990.

Rosen J.M., Oltmans S.J. and Evans W.F., Balloon borne observations of PSCs, frost point, ozone and nitric acid in the north polar vortex, Geophys. Res. Lett., 16, 791, 1989.

Sarkissian A., J.P. Pommereau and F. Goutail, Identification of polar stratospheric clouds from the ground by visible spectrometrie, Proc. First European Workshop on Polar Stratospheric Ozone Research, Schliersee, 193, October 1990.

Sarkissian A., J.P. Pommereau and F. Goutail, Identification of polar stratospheric clouds from the ground by visible spectrometrie, Geophys. Res. Lett., 18, 779, 1991.

Schneider W., G.K. Moorgat, G.S. Tyndall and J.P. Burrows, Absorption cross sections of NO<sub>2</sub> in the UV and visible region (200-700 nm) at 298 K, J. Photochem. Photobio., A- 40, 195-217, 1987.

Solomon S, R.R. Garcia, F.S. Rowland and D.J. Wuebbles, On the depletion of Antarctic ozone, Nature, 321, 755-758, 1986.

Solomon, S., A. L. Shmeltekopf and R.W. Sanders, On the interpretation of zenith sky absorption measurement, J. Geophys. Res., 92, 8311, 1987.



Toon O.B., P. Hamill, R.P. Turco and J. Pinto, Condensation of HNO<sub>3</sub> and HCl in the winter polar stratosphere, Geophys. Res. Let., 13, 1284-1287, 1986.

Toon O.B. and R.P. Turco, Polar stratospheric clouds and ozone depletion, Scientific american, 40-47, June 1991.

ANNEXE

## IDENTIFICATION OF POLAR STRATOSPHERIC CLOUDS FROM THE GROUND BY VISIBLE SPECTROMETRY

A. Sarkissian, J. P. Pommereau and F. Goutail

Service d'Aéronomie du CNRS, Verrières le Buisson, France

**Abstract.** When sighted from the ground in clear weather, stratospheric clouds make large changes in the sky color during twilight. Spectrometric measurements performed from the ground during CHEOPS show that the color changes can be either large reddenings or blueings. A radiative transfer model demonstrates that the first are caused by thin hazes above 22 km while the second are related to thick clouds below, and that the color change during twilight is little sensitive to tropospheric clouds. Statistics of presence of PSC's above Kiruna during CHEOPS which shows that reddenings are correlated with temperature below NAT condensation at high altitude (30 hPa, 21.5 km) and blueings at low altitude (50 hPa, 18.5 km), support this interpretation, as also the consistency with PSC measurements with in-situ aerosol counters, balloon radiometer and from satellite observations. Spectrometric observations of the zenith sky at twilight is therefore thought to be a powerful method for identifying the presence and the altitude of PSCs above a station in all tropospheric weather conditions.

## Introduction

Because of the heterogeneous reactions to which they are giving rise, Polar Stratospheric Clouds (PSCs) in the winter cold stratosphere, are thought to be a major component of ozone depletion in polar regions. Identification of their presence and conditions in which they are formed, are therefore of great importance. However, because polar regions are often overcast in winter, PSC's are difficult to sight from the ground and most of the knowledge about their occurrence comes from occasional balloon and aircraft flights and solar occultation observations from orbit in a limited range of latitudes [Hofmann et al., 1990; Herman et al., this issue; McCormick and Trepte, 1987]. Naked-eye sighting and lidar observations are restricted to clear weather conditions and thus limited information on PSC's above a given station are available. Routine ground-based detection of PSC's in all weather conditions, would therefore be of primary interest. The goal of the research reported here is the development of a method for identification of PSC's from the ground by the use of spectrometric measurements.

## Experimental Spectrometric Characteristics of PSC's

Ground-based zenith sky spectral observations have been performed regularly during CHEOPS III with the use of a (290-600 nm, 1 nm resolution) SAOZ spectrometer [Pommereau and Goutail, 1988] at Kiruna (68N, 21E) in

Sweden, from 10 January until 10 February and then at Sodankyla (67N, 27E) in Finland. Designed for measuring total columns of O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> twice a day at twilight, the instrument makes observations of the sunlight scattered at zenith by steps of 300 seconds during daytime until loss of sensitivity, that is at about 94° - 95° solar zenith angle (SZA) depending upon the cloud cover. Data analysis, conducted in real time, allows the calculation by a differential method of the atmospheric absorptions due to ozone, nitrogen dioxide, water vapour and the oxygen dimer (O<sub>4</sub>). The corresponding absorption features are then removed, leaving at the end of the process a spectrum whose characteristics are only dependent upon the scattering properties of the atmosphere.

Stratospheric temperatures above Kiruna in Winter 1989/90 were very cold (-85°C at the end of January with an extreme minimum of -94.4 °C on 6 February) until a pronounced minor warming on 8 February followed by a late progressive final warming in April [Naujokat et al., 1990]. Figure 1 shows examples of spectra of sunlight scattered at zenith, recorded around 92.5-93° SZA during the cold and the warm periods. The spectrum of 9 February, that is after the minor warming, is typical of most of SAOZ recordings throughout the year, the maximum flux being located around 460 nm, in the blue region of the spectrum. Sometimes during twilight in winter, the picture differs significantly. The maximum flux can either be shifted toward the red, giving rise to a purple sky as on 24 January, or toward the UV as on 6 February

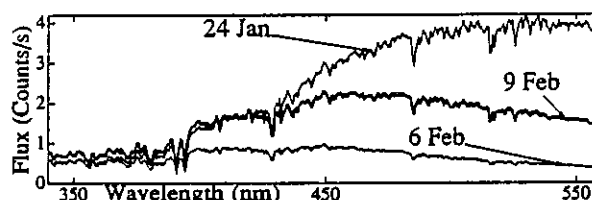


Fig. 1. Spectra of scattered sunlight at 92.5°-93° SZA.

In order to characterize the color of the zenith sky, a color index (CI) has been defined as the ratio between the observed fluxes at 550 and at 350 nm. These wavelengths have been chosen because they are free of large Fraunhofer solar absorption lines as well as away from the largest absorption bands of H<sub>2</sub>O and O<sub>4</sub>. Each measurement is an average of 3 pixels (1.8 nm) and the standard error in CI is smaller than 1%. According to weather and cloud conditions, this absolute index is found to vary from one day to another from 1.3 to 4. As we are interested by stratospheric clouds only, that is by CI variations during twilight, when most of tropospheric clouds are in the darkness, the color index was normalized to its value at 90° SZA for each twilight. Figure 2 shows several examples of CI variations versus SZA, all normalized to 1 at 90° SZA. Usually this relative index remains almost flat or

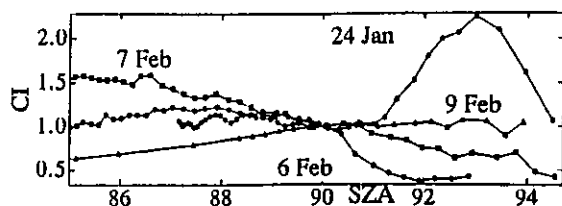


Fig. 2. Color index variations observed during twilight.

slowly blueing or reddening as it is the case on 9 February. Small variations are often present (CI between 0.7 and 1.2), which were identified as changes of tropospheric cloud cover during the twilight period.

In stratospheric winter conditions, that is before 8 February, the color index at large SZA is often observed to depart largely from the above description. Large reddenings by up to a factor 3.5 with maxima located between 92° and 94° SZA such as that of 24 January in the morning and blueings by up to a factor 2.5 such as those observed on 6 and 7 February in the morning, are frequently observed.

#### Modelling

As a first step to investigate the potential of the method, the CI variation was simulated with a simple radiative transfer model. The model calculates for each wavelength and by steps of 1 km, the fraction of the sunlight transmitted by the atmosphere and scattered in the vertical direction toward the instrument. At twilight, one can define a maximum scattering layer whose altitude increases rapidly with increasing SZA and decreasing wavelength [Solomon et al., 1987]. Air density and ozone profiles entered in the model are taken from the 1976 US standard atmosphere (60°N, winter), while background aerosols are those measured by SAGE II [Lenoble, personal communication]. A ratio of 40 between aerosol attenuation ( $\sigma$ ) and scattering ( $\beta$ ) perpendicular to the beam was taken, in agreement with balloon and lidar observations [Herman et al., this issue; Osborn et al., 1990]. Multiple scattering and atmospheric refraction are not included in this model.

Stratospheric clouds have been introduced into the model following 4 parameters: altitude of the center of the cloud layer, geometrical thickness  $\Delta Z$ , total vertical optical thickness  $\tau$  at 1  $\mu\text{m}$ , and scattering wavelength dependence ( $\lambda^{-\alpha}$ , with  $0 < \alpha < 3$ ). Realistic values for each type of PSC and tropospheric cirrus have been established from the literature [McCormick and Trepte, 1987; Hofmann et al., 1990; Browell et al., 1990; Osborn et al., 1990]. Table 1 summarizes the characteristics introduced in the model. The results are shown in figure 3.

Type Ia PSCs (not shown) formed of large Nitric Acid

Table 1. PSC characteristics used in the radiative transfert model.

PSC Type	Ia	Ib	IbThick	II	IIThick	Cirrus
Composition	NAT	NAT	NAT	ICE	ICE	ICE
$\alpha$	0.4	2	2	0.5	0.5	0
Altitude (km)	16-28	16-28	16-24	16-28	10-22	4-8
Thickness (km)	3,5	1,3,5	7,9	1,3,5	7,9	1
$\tau$ at 1 $\mu\text{m}$	0.02	0.08	0.1-0.2	0.08	0.1-0.2	0.5
$\sigma/\beta$	200	40-80	40	40	40	40

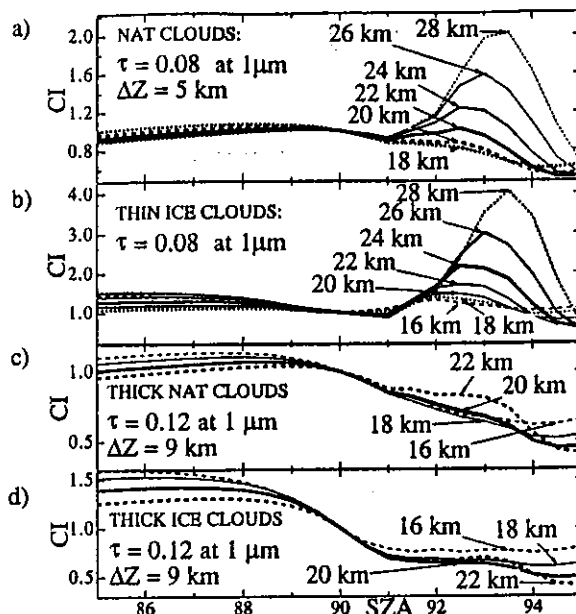


Fig. 3. Model simulations of the color index (see text).

Trihydrate (NAT) particles, have almost no signature (optical thickness too faint and scattering coefficient  $\beta$  too small); type Ib (Figure 3a) formed of small NAT particles result in a reddening of a maximum factor of the order of 2 when at 28 km, and small blueings when in the lower stratosphere below 22 km; type II ice PSCs (Figure 3b) result in very large reddenings when above 20 km and almost nothing if thin at low altitude. The SZA of the maximum reddening increases with the cloud altitude from 92.5° to 93.5° for altitudes varying from 20 to 28 km approximately. The amplitude of the reddening increases for decreasing geometrical thickness and for increasing scattering properties of the particles: because of their larger scattering coefficient, ice particles give rise to larger reddenings than NAT. A thin cloud in the lower stratosphere has almost no CI signature. Thick ( $\tau = 0.1$  to 0.2) type Ib or II clouds at low altitude (below 20 km) result in large blueings (Figures 3 c and 3 d).

A maximum reddening of 2.3 at 93° SZA, as observed on 24 January (Figure 2), would require a 1-3 km layer of type II PSC ( $\tau = 0.08$ ), or a thick, probably unrealistic, type Ib NAT PSC of 0.12 optical thickness and  $\Delta Z = 1$  km around 25 km. A blueing as observed on 7 February would require a thick (5-7 km) PSC (type Ib or II,  $\tau = 0.12$ ) at 20 km, while the observations of 6 February correspond to an even thicker cloud ( $\Delta Z = 9-11$  km,  $\tau = 0.12$ ) at 18-20 km, probably formed of ice particles because of the fast cut-off at 90° SZA.

Figure 4 gives a schematic explanation of the difference in color index variations for thin and thick clouds shown in Figure 3, together with relative weighting functions, expressed in fraction of the sunlight scattered toward the instrument, by a 1 km thick layer. At 93° SZA under clear conditions, the average scattering layer of the sunlight is at 26 km at 550 nm and at around 34 km at 350 nm (left panel). In the presence of a thick PSC located at low altitude (right panel), the average scattering layer is shifted upward because of an enhancement of attenuation along the optical path in the stratosphere. The red component normally scattered at 26 km is now largely attenuated along the tangent optical path in the

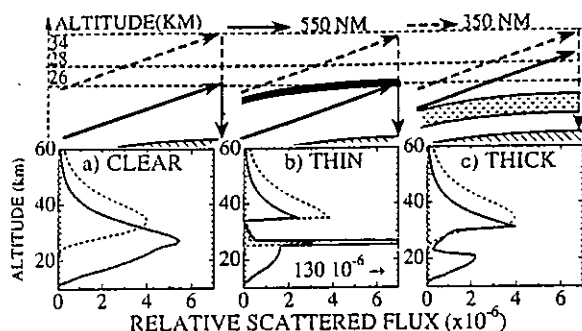


Fig. 4. Schematic explanation of color indices variations during twilight and weighting functions expressed as fraction of sunlight returned toward the instrument by a 1 km thick atmospheric layer.

cloud. The blue component remains almost the same and the sky is blue-shifted. In the presence of a geometrically and optically thin cloud, located for example at 26 km (middle panel), the solar beam is also partly attenuated when tangent. But when crossing the cloud at larger SZA, that is for tangent height lower than the cloud itself, the beam is little attenuated. The large increase of the scattering coefficient at the cloud level makes the resulting scattered flux downward to strongly enhance. In the case shown in Figure 4 (Type II,  $\Delta Z = 1$  km,  $\tau = 0.08$ ), the 550 nm contribution from the 1 km thick atmospheric layer at 26 km is multiplied by more than 25 (out of scale in Figure 4), compared to clear sky conditions. A similar effect is present in the blue component, but to a smaller extent. The sky is reddened.

Although scattering by large particles is wavelength-independent, dense tropospheric clouds and snow often present in Arctic regions below 4 km, are weighting the absolute color index toward the red. This comes from the increase of optical path by multiple scattering and therefore of the molecular attenuation. This effect is the reason why it is necessary to use CI normalized at  $90^\circ$  SZA and not absolute indices. Because of the relatively short duration of twilight compared to weather changes, the tropospheric contribution to CI can be assumed generally constant during the measurements period from  $88^\circ$  to  $94^\circ$  SZA.

Cirrus or cirro-stratus layers are also frequent, but in polar regions in winter, they are restricted to altitudes lower than 6–7 km. During twilight, this is far below the tangent height of the solar beam corresponding to the maximum scattering layer at 550 nm: 12 km at  $90^\circ$  SZA, 16 at  $91^\circ$ , 18 at  $92^\circ$  and 19 at  $93^\circ$ . According to the single scattering model, they will result in blueings when thick and reddenings when thin, but of small amplitude compared to PSC's ( $\pm 25\%$  in CI) and at smaller SZA:  $87$ – $88^\circ$ . Such features are frequently observed throughout the year, as they were for example during the second half of February and in March 1990 at Sodankylä (Figure 5). But no large blue or red color indices similar to the ones present in winter above Kiruna, can be found in our three years records at the polar circles in the Arctic and the Antarctic, during the warm stratosphere seasons.

Although of smaller amplitude, a "purple light" phenomenon at twilight due to stratospheric dust has been already recognized by Volz and Goody [1962] by both theoretical calculations and observations at midlatitude. Very similar to our observations, "rosy" twilights were reported by

Shaw [1981] over Fairbanks in Alaska. Abnormally large red-green color indices were observed peaking at  $93.5$ – $94^\circ$  SZA during a short period of time in late January and early February 1975. They were interpreted as scattering by a thin aerosol layer, resulting possibly from the explosive eruption of El Fuego volcano in Guatemala, 3 months earlier. The altitude for the solar zenith angle of the maximum color index (around 25 km) and the location and season, would suggest instead that PSC's very similar to ours, were observed.

### PSCs during CHEOPS III

Figure 5 shows the complete picture of reddenings (panel b) and blueings (panel d) observed from Kiruna and Sodankylä in January and February 1990, together with temperature at 30 hPa (panel a) and 50 hPa (panel c). Temperature levels labelled NAT and ICE are those where NAT and water vapour (5 ppmV) condense [Hanson and Mauesberger, 1988]. Because of technical reasons, spectrometric twilight data are missing on 10 and 11 January, on 4 (morning) and 10 February. High level red hazes were frequent when the temperature was below the level of NAT condensation at 30 hPa, that is between 10 January and 9 February. The largest reddenings correspond to 30 hPa (approx. 21.5 km) temperature close to or below the ice condensation. The correlation between reddenings, and temperature at high altitude, supports the model which shows that reddenings correspond to high altitude clouds. Equally in agreement with the model, optically thick clouds in the lower stratosphere, identified as blueings, existed at temperatures below NAT condensation at 50 hPa (approx. 18.5 km), that is between 18 January in the evening and 7 February on the morning. An isolated cloud is observed later on 16 February (day 47) above Sodankylä corresponding to another temperature minimum. The 2 small blueings later in March, were identified as cirrus and cirro-stratus. The thickest lower stratospheric clouds were observed on 6 and 7 February when the 30 hPa temperature dropped below  $-90^\circ\text{C}$ .

The above observations are in agreement with PSC's naked-eye sighting during CHEOPS: purple sky on 16 January in the evening and nacreous or Mother of Pearl

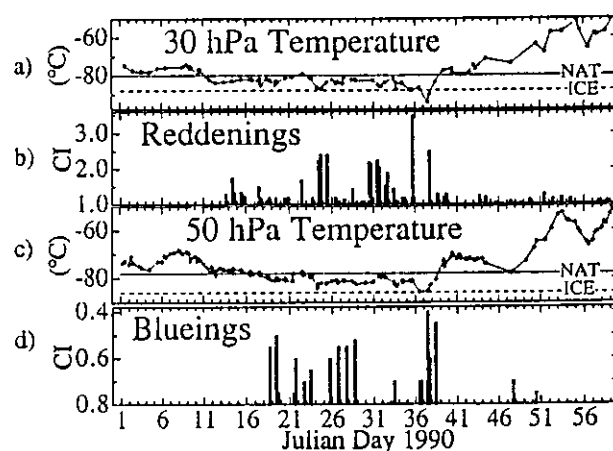


Fig. 5. Summary of PSC identifications and conditions in which they are formed during CHEOPS. From top to bottom: temperature at 30 hPa, amplitude of reddenings, temperature at 50 hPa and amplitude of blueings.

clouds, almost stationary on 19 January in the evening and on 4 and 6 February during the whole days.

They are also consistent with the aerosol counter reports [Hofmann and Deshler, 1990; Hofmann et al., 1990]. A type Ib PSC made of small (0.2  $\mu\text{m}$ ) NAT particles was detected between 20 and 24 km on 31 January, while the 2.2 CI reddening observed by the spectrometer can be reproduced with a cloud of 0.12 optical and 3 km geometric thicknesses, made of small particles ( $\alpha=3$ ), at around 23 km. The large and dense cloud, made of small NAT particles in its lower part, and large (2  $\mu\text{m}$ ) ice particles for its middle and upper part as measured between 18 and 24 km on 6 February, corresponds to the largest blueing on the spectrometer which was interpreted as a thick ice cloud centered around 20 km.

The balloon radiometer flown on 4 February in the afternoon [Herman et al., this issue] reported large signals interpreted as (i) an upper thin layer of rather large particles at 24–25 km, (ii) the main PSC extending from 19–20 km to 23–24 km and (iii) a lower layer from about 12 to 20 km. This event gave rise to the largest reddening observed during the campaign: amplitude 3.5 at 93° SZA, that is about 25 km. Following our model this would require a high scattering coefficient that is probably ice particles at high altitude.

Thick clouds, very similar to the ones observed in the Arctic on 31 January 1989 [Lefèvre and Cariolle, 1991], were also detected during CHEOPS by the TIROS Operational Vertical Sounder (TOVS) / High Resolution Infrared Sounder (HIRS 2) [Lefèvre, personal communication]. These clouds were the ones giving the maximum blueing in the spectrometer data on 6 February. They are thought to be mountain wave clouds.

### Conclusion

Ground-based spectrometric measurements performed during CHEOPS show that, depending on their altitude, nature and optical thickness, PSC's can give rise to either reddenings or blueings. A simple single scattering model shows that high altitude (22–26 km) clouds are responsible for reddenings, enhanced in presence of ice particles compared to NAT. Blueings are caused by lower and optically thicker clouds which attenuate strongly the visible component normally scattered in the lower stratosphere. During CHEOPS, reddenings were correlated to temperature below that of NAT condensation at 30 hPa, while blueings occurred at temperature below NAT condensation at 50 hPa.

Ground-based spectrometers are then able to identify PSCs even under bad tropospheric weather conditions and therefore to give good statistics of their occurrence above a station. A better quantification of the nature, altitude and thickness of PSC is anticipated from both multi-scattering modelling, and systematic validation by collocated lidar measurements which is presently under way at Dumont d'Urville in Antarctica.

**Acknowledgments.** Weather information was provided by P. Dedieu; the SAOZ instrument is run at Sodankylä by the

Finnish Meteorological Institute; this project is supported by the Ministère de la Recherche et de la Technologie and CNRS, which are all gratefully acknowledged. The authors would like also to thank H. K. Roscoe and the anonymous referees for their corrections and suggestions.

### References

- Browell, E.V., C.F. Butler, S. Ismail, P.A. Robinette, A.F. Carter, N.S. Higdon, O.B. Toon, M.R. Schoeberl and A.F. Tuck, Airborne lidar observations in wintertime Arctic stratosphere: polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Lett.*, **17**, 385–388, 1990.
- Hanson, D. and K. Mauersberger, Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **15**, 855–858, 1988.
- Hofmann, D.J., T. Deshler, Balloon borne measurements of polar stratospheric clouds and ozone at -93°C in the Arctic in February 1990, *Geophys. Res. Lett.*, **17**, 2185–2188, 1990.
- Hofmann, D.J., T. Deshler, F. Arnold, H. Schlager, Balloon observations of nitric acid aerosol formation in the Arctic stratosphere: II. Aerosol, *Geophys. Res. Lett.*, **17**, 1279, 1990.
- Lefèvre, F., and D. Cariolle, Total ozone measurements and stratospheric clouds detection during the AASE and the Technops Arctic balloon campaigns, *Geophys. Res. Lett.*, **18**, 33–36, 1991.
- McCormick, M.P. and C.R. Trepte, Polar stratospheric optical depth observed between 1978 and 1985, *J. Geophys. Res.*, **92**, 4297, 1987.
- Naujokat B., K. Labitske, R. Lenschow, K. Petzolt and R.-C. Wohlfart, The stratospheric winter 1989/90, *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, Free University of Berlin, 1990.
- Osborn, M.T., L.R. Poole and Pi-Huan Wang, SAM II and lidar aerosol profile comparisons during AASE, *Geophys. Res. Lett.*, **17**, 401–404, 1990.
- Pommereau, J. P. and F. Goutail, O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> ground-based measurements by visible spectrometry during arctic winter and spring 1988, *Geophys. Res. Lett.*, **15**, 891–894, 1988.
- Shaw, G. E., Radiance and color of the sky at twilight: perturbations caused by stratospheric haze, *Pageoph.*, **119**, 231–247, 1980/81.
- Solomon, S., A. L. Shmeltekopf and R.W. Sanders, On the interpretation of zenith sky absorption measurement, *J. Geophys. Res.*, **92**, 8311, 1987.
- Volz, F.E. and R.M. Goody, The intensity of the twilight and upper atmospheric dust, *J. Atmos. Sci.*, **19**, 385–406, 1962.

F. Goutail, J. P. Pommereau and A. Sarkissian, Service d'Aéronomie, Verrières le Buisson Cedex, 91371, France

Received: January 14, 1990

Revised: February 19, 1991

Accepted: March 1, 1991